

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-320094

(43)Date of publication of application : 16.11.2001

(51)Int.Cl.

H01L 33/00  
F21V 13/02  
H05B 33/12  
H05B 33/14  
// F21Y101:02

(21)Application number : 2001-086528

(71)Applicant : GENERAL ELECTRIC CO &lt;GE&gt;

(22)Date of filing : 26.03.2001

(72)Inventor : DUGGAL ANIL RAJ  
SRIVASTAVA ALOK MANI  
COMANZO HOLLY ANN

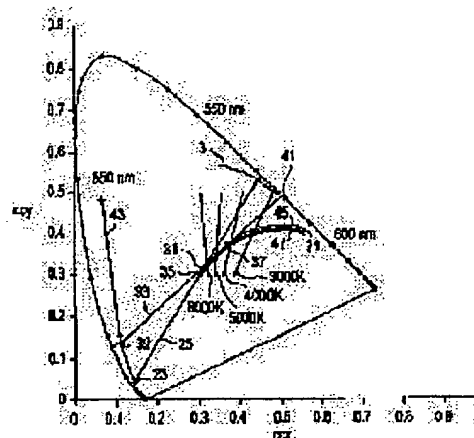
(30)Priority

Priority number : 2000 534575 Priority date : 27.03.2000 Priority country : US

## (54) WHITE LIGHT ILLUMINATION SYSTEM WITH IMPROVED COLOR OUTPUT

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a white light illumination system.  
SOLUTION: The white light illumination system includes a blue LED and a luminescent material. The system color output is improved when a line connecting the LED color coordinates and the luminescent material color coordinates approximates the black body locus on the CIE chromaticity diagram. The LED may have a peak emission wavelength between 470 and 500 nm. The luminescent material may be  $(Y1-x-zGdxCez)3Al5O12$ , where  $0.7 > x > 0.4$  and  $0.1 > z > 0$ .



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-320094

(P2001-320094A)

(43) 公開日 平成13年11月16日 (2001.11.16)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テームコード* (参考)
H 0 1 L 33/00		H 0 1 L 33/00	N
			C
			L
F 2 1 V 13/02		F 2 1 V 13/02	Z
H 0 5 B 33/12		H 0 5 B 33/12	E
審査請求 未請求 請求項の数46 O L 外国語出願 (全 51 頁) 最終頁に続く			

(21) 出願番号 特願2001-86528(P2001-86528)

(22) 出願日 平成13年3月26日 (2001.3.26)

(31) 優先権主張番号 09/534575

(32) 優先日 平成12年3月27日 (2000.3.27)

(33) 優先権主張国 米国 (U S)

(71) 出願人 390041542

ゼネラル・エレクトリック・カンパニ  
GENERAL ELECTRIC CO  
MPANY  
アメリカ合衆国、ニューヨーク州、スケネ  
クタディ、リバーロード、1番

(72) 発明者 アニル・ラジ・ドゥガル

アメリカ合衆国、ニューヨーク州、ニスカ  
ユナ、アルゴンキン・ロード、2322番

(74) 代理人 100093908

弁理士 松本 研一

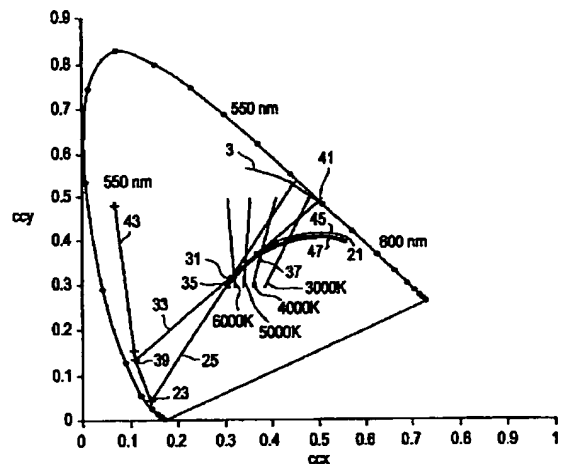
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 改善された光出力を有する白色光照明装置

(57) 【要約】

【課題】 白色光照明装置を提供する。

【解決手段】 白色光照明装置は、青色LED及び発光材料を含む。かかる装置の光出力は、LEDの色座標と発光材料の色座標とを結ぶ線がCIE色度図上の黒体軌跡に接近している場合に向上する。LEDは、470～500 nmの範囲内のピーク発光波長を有し得る。発光材料は、 $(Y_{1-x-z}Gd_xCe_z)_3Al_5O_{12}$  (ただし、 $0.7 > x > 0.4$ かつ $0.1 > z > 0$ である) であり得る。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 放射源と発光材料とを含む白色光照明装置において、前記放射源の発光スペクトルがCIE色度図上の第1の点を表わし、前記発光材料の発光スペクトルが前記CIE色度図上の第2の点を表わし、そして前記第1の点と前記第2の点とを結ぶ第1の線が前記CIE色度図上の黒体軌跡に接近していることを特徴とする装置。

【請求項2】 前記放射源が発光ダイオードである請求項1記載の装置。

【請求項3】 前記第1の線が前記黒体軌跡と2回交わる請求項2記載の装置。

【請求項4】 前記第1の線が前記黒体軌跡に対して接している請求項2記載の装置。

【請求項5】 前記CIE色度図上の前記黒体軌跡から0.01y軸単位未満だけ離れて前記第1の線上に第3の点及び第4の点が存在し、前記第3の点が第1の色温度に対応し、かつ前記第4の点が前記第1の色温度より少なくとも2000Kだけ高い第2の色温度に対応している請求項2記載の装置。

【請求項6】 前記第1の線上の前記第3の点及び前記第4の点が前記CIE色度図上の前記黒体軌跡から0.005y軸単位未満だけ離れて位置している請求項5記載の装置。

【請求項7】 前記第1の色温度が4000Kであり、かつ前記第2の色温度が6000Kである請求項6記載の装置。

【請求項8】 (a) 前記発光材料が $(A_{1-x}Gd_x)_3D_5E_{12}:Ce$  (式中、AはY、Lu、Sm及びLaのうちの少なくとも1者を有し、DはAl、Ga、Sc及びInのうちの少なくとも1者を有し、Eは酸素を有し、かつ $x>0.4$ である) から成ると共に、(b) 前記発光ダイオードのピーク発光波長が470nmより大きい請求項2記載の装置。

【請求項9】 前記発光材料が $(Y_{1-x-z}Gd_xCe_z)_3Al_5O_{12}$  (ただし、 $0.7>x>0.4$ 、かつ $0.1>z>0$ である) を有する請求項8記載の装置。

【請求項10】 前記発光材料が更にフッ素を含有する請求項9記載の装置。

【請求項11】 前記発光材料が $(Y_{0.37}Gd_{0.6}Ce_{0.03})_3Al_5O_{12}$  蛍光体を有する請求項9記載の装置。

【請求項12】 前記発光ダイオードが470nmより大きくかつ500nmより小さいピーク発光波長を有するGaN、ZnSe及びSiCから成る少なくとも1つの半導体層を含む請求項8記載の装置。

【請求項13】 前記発光ダイオードのピーク発光波長が475~480nmである請求項12記載の装置。

【請求項14】 前記発光ダイオードがInGaNのp-n接合を含む請求項12記載の装置。

【請求項15】 前記発光材料が $(Y_{1-x-z}Gd_xCe_z)_3$

$Al_5O_{12}$  (ただし、 $0.7>x>0.4$ 、かつ $0.1>z>0$ である) を含むと共に、前記発光ダイオードのピーク発光波長が470nmより大きくかつ500nmより小さい請求項8記載の装置。

【請求項16】 前記発光ダイオードを含有するシェル、及び前記シェルと前記発光ダイオードとの間に配置された封入材料が更に含まれていて、(a) 前記発光材料が前記発光ダイオードの表面上に塗布された蛍光体であるか、(b) 前記発光材料が前記封入材料中に散在する蛍光体であるか、(c) 前記発光材料が前記シェル上に塗布された蛍光体であるか、あるいは(d) 前記発光材料が前記発光ダイオードの表面上に配置されたシンチレータである請求項15記載の装置。

【請求項17】 前記装置から放出される放射が、4000~6000Kの範囲内の色温度に関し、前記発光材料の厚さと実質的に関係なく前記CIE色度図上の黒体軌跡に接近している請求項2記載の装置。

【請求項18】 前記装置から放出される放射のCIE色度座標が $x=0.31$ かつ $y=0.33$ から $x=0.44$ かつ $y=0.4$ までの範囲内にある請求項2記載の装置。

【請求項19】 前記放射源が、レーザダイオード、有機発光ダイオード、及びプラズマディスプレイ又は蛍光ランプ中における放射性ガス放電のうちの1者から成る請求項1記載の装置。

【請求項20】 (a)  $(A_{1-x}Gd_x)_3D_5E_{12}:Ce$  (式中、AはY、Lu、Sm及びLaのうちの少なくとも1者を含み、DはAl、Ga、Sc及びInのうちの少なくとも1者を含み、Eは酸素を含み、かつ $x>0.4$ である) を含む発光材料と、(b) 470nmより大きいピーク発光波長を有する発光ダイオードとを含むことを特徴とする白色光照明装置。

【請求項21】 前記発光材料が $(Y_{1-x-z}Gd_xCe_z)_3Al_5O_{12}$  (ただし、 $0.7>x>0.4$ 、かつ $0.1>z>0$ である) を含む請求項20記載の装置。

【請求項22】 前記発光材料が更にフッ素を含有する請求項21記載の装置。

【請求項23】 前記発光材料が $(Y_{0.37}Gd_{0.6}Ce_{0.03})_3Al_5O_{12}$  蛍光体を含む請求項21記載の装置。

【請求項24】 前記発光ダイオードが470nmより大きくかつ500nmより小さいピーク発光波長を有するInGaNのp-n接合を含む請求項20記載の装置。

【請求項25】 前記発光ダイオードのピーク発光波長が475~480nmである請求項24記載の装置。

【請求項26】 前記発光材料が $(Y_{1-x-z}Gd_xCe_z)_3Al_5O_{12}$  (ただし、 $0.7>x>0.4$ 、かつ $0.1>z>0$ である) を含み、かつ前記発光ダイオードのピーク発光波長が470nmより大きくかつ500nmより小さい請求項20記載の装置。

【請求項27】 前記発光ダイオードを含有するシェル、及び前記シェルと前記発光ダイオードとの間に配置された封入材料が更に含まれていて、(a) 前記発光材料が前記発光ダイオードの表面上に塗布された蛍光体であるか、(b) 前記発光材料が前記封入材料中に散在する蛍光体であるか、(c) 前記発光材料が前記シェル上に塗布された蛍光体であるか、あるいは(d) 前記発光材料が前記発光ダイオードの表面上に配置されたシンチレータである請求項20記載の装置。

【請求項28】 前記装置から放出される放射が、4000～6000Kの範囲内の色温度に関し、前記発光材料の厚さと実質的に関係なくCIE色度図上の黒体軌跡に接近している請求項20記載の装置。

【請求項29】 前記装置から放出される放射のCIE色度座標が $x=0.31$ かつ $y=0.33$ から $x=0.44$ かつ $y=0.4$ までの範囲内にある請求項20記載の装置。

【請求項30】 放射源と発光材料とを含む白色光照明装置の製造方法において、CIE色度図上の黒体軌跡に接近している第1の線を選択する工程と、前記第1の線上の第1の点によって表わされる発光スペクトルを有するように前記放射源を形成する工程と、前記第1の線上の第2の点によって表わされる発光スペクトルを有するように前記発光材料を形成する工程と、を含むことを特徴とする方法。

【請求項31】 前記放射源が発光ダイオードから成る請求項30記載の方法。

【請求項32】 前記第1の線が前記黒体軌跡と2回交わる請求項31記載の方法。

【請求項33】 前記第1の線が前記黒体軌跡に対して接している請求項31記載の方法。

【請求項34】 前記CIE色度図上の前記黒体軌跡から0.01 $\mu$ m単位未満だけ離れて前記第1の線上に第3の点及び第4の点が存在し、前記第3の点が第1の色温度に対応し、かつ前記第4の点が前記第1の色温度より少なくとも2000Kだけ高い第2の色温度に対応している請求項31記載の方法。

【請求項35】 前記第1の線上の前記第3の点及び前記第4の点が前記CIE色度図上の前記黒体軌跡から0.005 $\mu$ m単位未満だけ離れて位置している請求項34記載の方法。

【請求項36】 前記第1の色温度が4000Kであり、かつ前記第2の色温度が6000Kである請求項35記載の方法。

【請求項37】 (a) 前記発光材料が $(A_{1-x}Gd_x)_3D_5E_{12}$ :Ce (式中、AはY、Lu、Sm及びLaのうちの少なくとも1者であり、DはAl、Ga、Sc及びInのうちの少なくとも1者であり、Eは酸素であり、かつ $x>0.4$ である)を含み、かつ(b) 前記発光ダイオ

ードのピーク発光波長が470nmより大きい請求項31記載の方法。

【請求項38】 前記発光材料が $(Y_{1-x-z}Gd_xCe_z)_3Al_5O_{12}$  (ただし、 $0.7>x>0.4$ 、かつ $0.1>z>0$ である)を含み、前記発光ダイオードのピーク発光波長が470nmより大きくかつ500nmより小さい請求項37記載の方法。

【請求項39】 前記発光材料が $(Y_{0.37}Gd_{0.6}Ce_{0.03})_3Al_5O_{12}$  蛍光体を含み、前記発光ダイオードが475～480nmのピーク発光波長を有するInGaNP-n接合を含む請求項38記載の方法。

【請求項40】 前記発光材料を形成する前記工程が、 $Y_2O_3$ 粉末、 $CeO_2$ 粉末、 $Al_2O_3$ 粉末、 $GdO_2$ 粉末及び $AlF_3$ 融剤を混合して第1の粉末を生成させ、前記第1の粉末を還元雰囲気中で焼結して焼結体を形成し、次いで前記焼結体を第2の粉末に転化させることを含む請求項37記載の方法。

【請求項41】 前記発光ダイオードを形成する前記工程が、シェル内に発光ダイオードを配置し、次いで前記シェルに封入材料を充填することを含み、前記発光材料を形成する前記工程が、(a) 前記第2の粉末と溶剤とから成る懸濁液を前記発光ダイオードの表面上に塗布し、そして前記懸濁液を乾燥すること、(b) 前記第2の粉末を前記封入材料中に散在させること、あるいは(c) 前記第2の粉末と溶剤とから成る懸濁液を前記シェル上に塗布し、そして前記懸濁液を乾燥することを含む請求項40記載の方法。

【請求項42】 前記装置から放出される放射が、4000～6000Kの範囲内の色温度に関し、前記発光材料の厚さと実質的に関係なく前記CIE色度図上の黒体軌跡に接近している請求項31記載の装置。

【請求項43】 前記発光ダイオードを形成する前記工程が、前記第1の線上の前記第1の点によって表わされる発光スペクトルを有する既存の発光ダイオードを選択し、そして前記発光ダイオードを前記照明装置内に配置することを含む請求項31記載の方法。

【請求項44】 前記発光材料を形成する前記工程が、前記第1の線上の前記第1の点によって表わされる発光スペクトルを有する既存の発光材料を選択し、そして前記発光材料を前記照明装置内に配置することを含む請求項31記載の方法。

【請求項45】 前記黒体軌跡に接近している前記第1の線を選択する単一の工程に基づき、複数の発光ダイオード及び複数の発光材料のうちの少なくとも1者を形成する工程を更に含む請求項31記載の方法。

【請求項46】 前記放射源が、有機発光ダイオード、レーザダイオード、及びプラズマディスプレイ又は蛍光ランプ中における放射性ガス放電のうちの1者から成る請求項30記載の方法。

【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の背景】本発明は白色光照明装置に関するものであって、更に詳しく言えば、発光ダイオード(LED)から放出された青色光を白色光に変換するためのセラミックYAG:Ce:Gd蛍光体に関する。

【0002】白色発光LEDは、液晶ディスプレイにおけるバックライトとして使用されると共に、小型の常用ランプ及び蛍光ランプの代替品として使用されている。エス・ナカムラ(S. Nakamura)等の著書「ザ・ブルー・レーザ・ダイオード(The Blue Laser Diode)」(スプリングー社、1997年)の第10、4章216～221頁に記載されているごとく、白色発光LEDは青色発光半導体LEDの出力面上にセラミック蛍光体層を形成することによって製造される。なお、上記参考書の記載内容は引用によって本明細書中に組込まれる。従来、青色発光LEDはInGaIn単一量子井戸型LEDであり、また蛍光体は式 $Y_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}$ のセリウム添加イットリウムアルミニウムガーネット(YAG)である。LEDから放出された青色光は蛍光体を通して伝達され、そして蛍光体から放出された黄色光と混合される。観察者は、青色光と黄色光との混合物を白色光として感知する。

【0003】青色発光LED、黄色発光YAG蛍光体、及びLEDと蛍光体との白色合成出力の色度座標は、図1に示されるごとく、公知のCIE色度図上にプロットすることができる。色度座標及びCIE色度図は、幾つかの教科書中に詳しく説明されている。かかる教科書の実例としては、ケイ・エッチ・バトラー(K.H. Butler)著「フルオレセント・ランプ・ホスファーズ(Fluorescent Lamp Phosphors)」(ペンシルヴェニア州立大学出版局、1980年)の98～107頁、及びジー・ブラッセ(G. Blasse)等著「ルミネセント・マテリアルズ(Luminescent Materials)」(スプリングー・フェアラク社、1994年)の109～110頁が挙げられる。なお、これらの教科書の記載内容は引用によって本明細書中に組込まれる。図1に示されるごとく、白色発光のために使用される従来の青色発光LEDの色度座標は図1中のCIE色度図上の円1内に位置する。換言すれば、LEDの色度座標は円1内のただ1つの点によって表わされるのであって、個々の点の位置はLEDのピーク発光波長に依存する。

【0004】YAG:Ce<sup>3+</sup>蛍光体の色度座標は、Y格子部位におけるGdドーパントのレベル及び(又は)Al格子部位におけるGaドーパントのレベルに応じ、図1中の線3に沿った点によって表わされる。たとえば、高レベルのGdドーパント及び(又は)低レベルのGaドーパントを含有するYAG蛍光体の色度座標は点5に位置することがある一方、低レベルのGdドーパント及び(又は)高レベルのGaドーパントを含有するYAG蛍光体の色度座標は点7に位置することがある。また、

中間レベルのGd及び(又は)Gaドーパントを含有するYAG蛍光体の色度座標は線3に沿って点5及び7の間の点(たとえば、点9、11、13又は15)に位置することがある。

【0005】青色LED及びYAG蛍光体の合成出力の色度座標は、図1のCIE色度図上の(線17及び19を境界する)扇形領域内において変化し得る。換言すれば、ナカムラ等の教科書の220頁に記載されているごとく、LED及び蛍光体の合成色度座標は図1中の円1、線3、線17及び線19を境界とする領域内のいずれかの点であり得る。とは言え、ナカムラ等によって記載されたLED-蛍光体系は幾つかの欠点を有している。

【0006】図1に示されるごとく、CIE色度図は線21によって表わされる公知の黒体軌跡(BBL)を含んでいる。BBLに沿って位置する色度座標(すなわち、色点)は、プランクの方程式 $E(\lambda) = A \lambda^{-5} / (e^{(B/\lambda) - 1})$ に従う。式中、Eは発光強度、 $\lambda$ は発光波長、Tは黒体の色温度、そしてA及びBは定数である。図1中のBBL上には、色温度T(単位K)の様々な値が示されている。更にまた、BBL上又はその近傍に位置する色点又は色度座標は、観察者にとって快い白色光を生み出す。典型的な白色照明光源は、2500～7000Kの範囲内の色温度を持ったBBL上の色度点を有するように選ばれる。たとえば、3900Kの色温度を持ったBBL上の点を有するランプは「自然白色」と表示され、また3000Kの色温度を持ったものは「標準温白色」と表示される。なお、BBLから遠く離れて位置する色点又は色度座標は観察者にとって白色光と認められ難くなる。従って、図1中に示されたLED-蛍光体系は線17及び19の間に多くの色点又は色度座標を含むが、それらは照明用途のために適格な白色光を生み出すことはない。

【0007】白色光源として有用であるためには、LED-蛍光体系の色度座標はBBL上又はその近傍に位置することが必要である。LED-蛍光体系の光出力は、蛍光体の製造に際して頻繁かつ日常的に起こる所望のパラメータからの避け難い偏差(すなわち、製造上の系統誤差)のために大きく変動する。

【0008】たとえば、LED-蛍光体系の光出力は蛍光体の厚さに対して非常に敏感である。蛍光体が薄過ぎると、LEDから放出された青色光が所望以上の量で蛍光体を透過してしまう。LEDの出力が優勢となるため、LED-蛍光体系の合成光出力は青味がかって見える。このような場合、系の出力波長の色度座標はLEDの色度座標に近接して位置していて、CIE色度図上のBBLからは遠去かっている。それに対し、蛍光体が厚過ぎると、厚い蛍光体層を透過するLEDからの青色光が所望量より少なくなる。その場合、蛍光体の黄色の出力が優勢となるため、LED-蛍光体系の合成光出力は

黄色味がかって見える。

【0009】それ故、蛍光体の厚さは系の色出力に影響を及ぼす重要な変数である。残念ながら、蛍光体の厚さはLED-蛍光体系の大規模生産に際して制御するのが困難であって、蛍光体厚さの変動は白色光照明用途に適さない色出力又は白色以外の色（すなわち、青味がかった色や黄色味がかった色）に見える系出力をもたらすことが多い。その結果、LED-蛍光体系の製造歩留りは許容し得ないほどに低くなることもある。

【0010】図2は、点23に色度座標を有する青色蛍光LED上に、点11に色度座標を有する従来のYAG:Ce<sup>3+</sup>蛍光体層を配置して成る系のCIE色度図である。従って、この系の色度座標は図2中の点11及び23を結ぶ線25に沿って位置している。蛍光体層が白色光を生み出すために必要な厚さよりも薄ければ、蛍光体層を透過するLEDからの青色光が多くなり過ぎ、そして系の光出力の色度座標は（たとえば、点27のように）BBLより低くなってLEDの座標に近づく。この系の出力は青味がかって見える。蛍光体層が白色光を生み出すために必要な厚さよりも厚ければ、蛍光体層によって吸収されるLEDからの青色光が多くなり過ぎ、そして系の色度座標は（たとえば、点29のように）BBLより高くなって蛍光体の座標に近づく。この系の出力は黄色味がかって見える。系の色度座標がBBL上（点31）又はその近傍に位置するのは、蛍光体層の厚さが適格な白色光を生み出すために必要な厚さにほぼ正確に等しくなった場合だけである。このように、図2は系の色出力が蛍光体層の厚さの変動に敏感であることを示している。

【0011】更にまた、従来のLED-蛍光体系はその他の欠点をも有している。BBL上又はその近傍に色度座標を有する様々な色温度の白色光照明装置（すなわち、照明目的のために適格な白色光を生み出す装置）を得るためには、蛍光体の組成を変えなければならない。たとえば、従来の系が図2中の点11に色度座標を有する組成の蛍光体を含む場合、かかる特定の蛍光体を含むLED-蛍光体系がBBLの近傍（すなわち、線27上の点31の近傍）に色度座標を有するのは、約5800～6800Kの狭い色温度範囲内に限られる。この範囲外の色温度に関しては、上記のごとき特定の蛍光体組成を有する系は照明用途のために適格な白色光を生み出さない。それ故、5800～6800Kの範囲外の所望の色温度に関して照明用途のために適格な白色光を生み出す系を得るためには、蛍光体の組成を変えなければならない。蛍光体組成の所要の変化は、製造プロセスの経費及び複雑度を増大させる。本発明は、上記のごとき問題を解消又は少なくとも軽減しようとするものである。

【0012】

【発明の概要】本発明の一側面に従えば、放射源と発光材料を含む白色光照明装置において、放射源の発光ス

ペクトルがCIE色度図上の第1の点を表わし、発光材料の発光スペクトルがCIE色度図上の第2の点を表わし、そして第1の点と第2の点を結ぶ第1の線がCIE色度図上の黒体軌跡に接近していることを特徴とする装置が提供される。

【0013】本発明の別の側面に従えば、 $(A_{1-x}Gd_x)_3D_5E_{12}:Ce$ （式中、AはY、Lu、Sm及びLaのうちの少なくとも1者を含み、DはAl、Ga、Sc及びInのうちの少なくとも1者を含み、Eは酸素を含み、かつ $x>0.4$ である）を含む発光材料と、470nmより大きいピーク発光波長を有する発光ダイオードとを含む白色光照明装置が提供される。

【0014】本発明の更に別の側面に従えば、放射源と発光材料とを含む白色光照明装置の製造方法において、CIE色度図上の黒体軌跡に接近している第1の線を選択する工程と、第1の線上の第1の点によって表わされる発光スペクトルを有するように放射源を形成する工程と、第1の線上の第2の点によって表わされる発光スペクトルを有するように発光材料を形成する工程とを含むことを特徴とする方法が提供される。

【0015】

【好適な実施の態様の詳細な説明】先行技術における問題点を考慮すれば、装置の製造プロセス中における誤差（特に、発光材料の厚さの誤差や変動）に対してより敏感でない色出力を与えるような放射源-発光材料白色光照明装置を得ることが望ましい。更にまた、発光材料の組成を変化させることなしに広範囲の色温度に関して照明目的のために適格な白色光を与え得るような放射源-発光材料白色光照明装置を得ることも望ましい。なお、放射源はLEDから成ることが好ましい。

【0016】本発明者等は、LEDの色度座標を表わす点と発光材料の色度座標を表わす点を結ぶ線がCIE色度図上の黒体軌跡に接近している時、LED-発光材料系の光出力が製造時の誤差に対してより敏感でなくなることを見出した。更にまた、かかる系は発光材料の組成を変化させることなしに広範囲の色温度に関して照明目的のために適格な白色光を与えることができる。

【0017】「発光材料」という用語は、粉末状の発光材料（蛍光体）及び固体状の発光材料（シンチレータ）を包括するものである。「LEDの色度座標」という用語は、CIE色度図上におけるLEDの発光スペクトルの色度座標を指す。「発光材料の色度座標」という用語は、CIE色度図上における発光材料の発光スペクトルの色度座標を指す。

【0018】LEDの色度座標と発光材料の色度座標とを結ぶ線がBBL曲線に接近するのには、様々なやり方がある。本発明の好適な実施の一態様に従えば、図3及び4に示されるごとく、BBL曲線と2回交わる線はBBL曲線に接近しているものである。図4は、図3の中央部分を拡大したものである。たとえば、線33は点3

5及び37においてBBL曲線21と2回交わっている。線33は、LEDの色度座標39と発光材料の色度座標41とを結ぶものである。勿論、線33はもっぱら例示を目的として示されている。様々なLEDの色度座標と様々な発光材料の色度座標とを結びかつBBL曲線と2回交わる線は、それ以外にも数多く存在し得る。たとえば、線43に沿ってLEDのピーク発光波長（従って色度座標）を変化させるか、あるいは線3に沿って発光材料のピーク発光波長を変化させることにより、かかる線の勾配を変化させることができる。

【0019】照明用途のために適格と見なされる白色光源は、BBLに対して通例 $\pm 0.01$  y軸単位の範囲内にあり、また好ましくは $\pm 0.005$  y軸単位の範囲内にある。「y軸単位」とは、CIE色度図のy軸に沿った単位である。BBL曲線と2回交わる線（たとえば、線33）がBBL曲線に接近している理由は、この線上の多くの点がBBL曲線から $0.01$  y軸単位以下好ましくは $0.005$  y軸単位以下しか離れていないからである。

【0020】たとえば、約7000～3500Kの間に位置する線33上の任意の点は観察者にとって白色に見え、従って適格な白色光源に対応している。なぜなら、これらの点はBBL曲線21から $0.01$  y軸単位以下しか離れていない色度座標を含むCIE色度図の空間を規定する線45及び47の間に位置しているからである。

【0021】線33がBBL曲線と交わる際には、図4に示されるごとく、それが少なくとも2000Kだけ離れた色温度に対応しかつBBL曲線21から $0.01$  y軸単位以下しか離れていない2つの点を含むようにすることが好ましい。たとえば、約6000K及び4000Kの温度にそれぞれ対応する点49及び51は、BBL曲線21から $0.01$  y軸単位以下しか離れることなく線33上に位置している。点49及び51の間において線33上に存在する点もまた、図4に示されるごとく、BBL曲線から $0.01$  y軸単位の範囲内において線45及び47の間に位置している。従って、これら全ての点が照明用途のために適格な白色光源に対応している。更にまた、約10800K及び3800K（点53）の色温度に対応する線33上に任意の点に色度座標を有する系を選択することにより、発光材料の組成を変化させることなしに広範囲の色温度を有する白色光照明装置を得ることが可能となる。

【0022】線33がBBL曲線と交わる際には、図5に示されるごとく、それが少なくとも2000Kだけ離れた色温度に対応しかつBBL曲線21から $0.005$  y軸単位以下しか離れていない2つの点を含むようにすることが最も好ましい。たとえば、約6000K及び4000Kの温度にそれぞれ対応する点49及び51は、BBL曲線21から $0.005$  y軸単位以下しか離れる

ことなく線33上に位置している。点49及び51の間において線33上に存在する点もまた、図5に示されるごとく、BBL曲線から $0.005$  y軸単位の範囲内において線55及び57の間に位置している。従って、これら全ての点が照明用途のために適格な白色光源に対応している。

【0023】それに対し、従来の線25に沿って4000Kと6000Kとの間に位置する色度座標の大部分はBBLから $0.01$  y軸単位の範囲内に存在していない。たとえば、従来の線25上において約5200K（図4中の点59）と6400K（図4中の点61）との間に位置する色度座標のみがBBLから $0.01$  y軸単位の範囲内に存在している。更にまた、従来の線25上において約5770K（図5中の点63）と6780K（図5中の点64）との間に位置する色度座標のみがBBLから $0.005$  y軸単位の範囲内に存在している。5200Kより低い相関色温度を有する到達可能な色度座標（点59より上方の色度座標）は、BBLから $0.01$  y軸単位より遠く離れて位置している（すなわち、BBLから $0.01$  y軸単位の距離を規定する線45よりも上方に位置している）。それ故、点59より上方に位置する線25上の点は照明用途のために適格な白色光源に対応しない。従って、本発明の第1の好適な実施の態様に比べ、従来の系は製造上の誤差に対してより敏感である。更にまた、5200～6400Kの範囲外の色温度に対応する色度座標を有すると共に照明用途のために適格な装置を得るためには、従来の系における蛍光体の組成を変化させなければならない。

【0024】本発明の第2の好適な実施の態様に従えば、図6に示されるごとく、BBL曲線に接近する線がBBL曲線に対して接している。たとえば、線65はBBL曲線に対して接している。勿論、線65はもっぱら例示を目的として示されている。様々なLEDの色度座標と様々な発光材料の色度座標とを結びかつBBL曲線に対して接している線は、それ以外にも数多く存在し得る。たとえば、線43に沿ってLEDのピーク発光波長を変化させるか、あるいは線3に沿って発光材料のピーク発光波長を変化させることにより、かかる線の勾配を変化させることができる。

【0025】BBL曲線に対して接する線（たとえば、線65）がBBL曲線に接近している理由は、この線上の多くの点がBBL曲線から $0.01$  y軸単位以下好ましくは $0.005$  y軸単位以下しか離れていないからである。たとえば、約6500～3500Kの間に位置する線65上の任意の点は線45及び47の間に位置しているから、適格な白色光に対応している。線65がBBL曲線に接する際には、それが少なくとも2000Kだけ離れた色温度に対応しかつBBL曲線21から $0.01$  y軸単位以下好ましくは $0.005$  y軸単位以下しか離れていない2つの点を含むようにすることが好まし

い。たとえば、4000K及び4000Kの色温度に対応する点間においてCIE色度図中の線65上に位置する点は、図6中の線45及び47の間に位置している。換言すれば、点66及び67の間において線65上に存在する全ての点は、図6に示されるごとく、BBL曲線から0.01y軸単位の範囲内に（すなわち、線45及び47の間に）位置している。従って、点66及び67の間において線65上に存在する全ての点が照明用途のために適格な白色光に対応している。

【0026】本発明の第3の好適な実施の態様に従えば、BBL曲線に接近している線が、少なくとも2000Kだけ離れかつBBL曲線から0.01y軸単位以下しか離れていない2つの点を含む。たとえば、図6に示されるごとく、線68は6000K及び4000Kの色温度にそれぞれ対応しかつBBL曲線から0.01y軸単位以下しか離れていない（すなわち、線45及び47の間に位置している）2つの点69及び70を含んでいる。勿論、線68はもっぱら例示を目的として示されている。様々なLEDの色度座標と様々な発光材料の色度座標とを結ぶと共に、少なくとも2000Kだけ離れかつBBL曲線から0.01y軸単位以下しか離れていない2つの点を含むような線は、それ以外にも数多く存在し得る。たとえば、線43に沿ってLEDのピーク発光波長を変化させるか、あるいは線3に沿って発光材料のピーク発光波長を変化させることにより、かかる線の勾配を変化させることができる。更にまた、BBL曲線に接近している線はBBL曲線21と線47との間にも位置し得る。

【0027】線がBBL曲線に接近するやり方は、第1、第2及び第3の好適な実施の態様に関連して記載されたもの以外にも存在し得ることを理解すべきである。LED-発光材料系から放出される光のCIE色度座標は $x=0.31$ かつ $y=0.33$ （ $T=6700K$ 又は「昼光色」）から $x=0.44$ かつ $y=0.4$ （ $T=3000K$ 又は「標準温白色」）までの範囲内にあることが好ましい。とは言え、所望ならば、かかる系から放出される光は白色に対応すると考えられるその他の色度座標を有していてもよい。

【0028】本発明の第1の好適な特徴に従えば、発光材料は $(A_{1-x}Gd_x)_3D_5E_{12}$ ：Ceを含む。式中、AはY、Lu、Sm及びLaのうちの少なくとも1者を含み、DはAl、Ga、Sc及びInのうちの少なくとも1者を含み、Eは酸素を含み、かつ $x>0.4$ である。本発明の第2の好適な特徴に従えば、発光ダイオードは470nmより大きいピーク発光波長を有する発光ダイオードから成ることが好ましい。なお、かかるピーク発光波長は470～500nmの範囲内にあることが好ましく、また475～480nmの範囲内にあること（たとえば、478nmであること）が最も好ましい。本発明の第3の好適な特徴に従えば、白色光照明装置は第1

の好適な特徴に基づく発光材料と第2の好適な特徴に基づく発光ダイオードとを含んでいる。

【0029】第1の好適な特徴に基づく発光材料においては、Ceイオンは賦活剤イオンとして作用し、そして発光材料から黄色の光を放出させるために役立つ。Gdイオンは、照明装置からの出力の色（すなわち、色度座標）に影響を及ぼす。本発明者等は、Gdイオンの原子比（すなわち、x）が0.4より大きい場合、発光材料から放出される光の色度座標はこれらの色度座標とLEDの色度座標とを結ぶ線をBBL曲線に接近させる。たとえば、 $x>0.4$ であるような $(A_{1-x}Gd_x)_3D_5E_{12}$ ：Ce発光材料は概して図1中の点5及び15の間に位置する色度座標を持った光を放出する。Gdをほとんど若しくは全く含有しない発光材料に比べ、高いGd含量は発光材料の効率を数パーセントだけ低下させる。しかしながら、Gd含量を増加させることによって達成し得る照明装置の製造歩留りの向上が装置効率の僅かな低下を補う。

【0030】発光材料は、Gaを全く含有しないか、あるいは痕跡量のGaしか含有せず、そして $(Y_{1-x-z}Gd_xCe_z)_3Al_5O_{12}$ （ただし、 $0.7>x>0.4$ 、かつ $0.1>z>0$ である）から成ることが好ましい。とは言え、所望ならば、xの値を最大0.8まで増大させることができる。発光材料はまた、その他の元素を含有することもある。たとえば、発光材料の製造に際してフッ素含有融剤（たとえば、フッ化アンモニウム、 $YF_3$ 又は $AlF_3$ ）が使用される場合、発光材料は少量のフッ素を含有することがある。なお、発光材料は $(Y_{0.37}Gd_{0.6}Ce_{0.03})_3Al_5O_{12}$  蛍光体から成ることが最も好ましい。とは言え、所望ならば、発光材料はシンチレータから成っていてもよい。

【0031】第2の好適な特徴に基づくLEDは、470nmより大きいピーク発光波長を有すると共に、それから放出される放射を発光材料に入射させた場合に白色光を生み出し得るような任意のLEDから成り得る。換言すれば、かかるLEDは任意適宜のIII-V、II-VI又はIV-IV半導体層に基づく半導体ダイオードから成り得る。かかるLEDは、GaN、ZnSe又はSiCから成る少なくとも1つの半導体層を含有することが好ましい。また、かかるLEDは470nmより大きくかつ500nmより小さいピーク発光波長を持ったInGaNのp-n接合を有する単一量子井戸型LEDから成ることが最も好ましい。とは言え、多重量子井戸型のLED又は量子井戸を持たないLEDを使用することもできる。なお、475～480nm（たとえば、478nm）のピーク発光波長が最も好適である。図3及び5中の線43に沿って470～500nmの間に位置するピーク発光波長は、LEDの色度座標と発光材料の色度座標とを結ぶ線をBBL曲線に接近させる。

【0032】本発明の第3の好適な特徴に従えば、発光



材料は $(A_{1-x}Gd_x)_3D_5E_{12}:Ce$  (ただし、 $x>0.4$ である)を含むと共に、LEDのピーク発光波長は470nmより大きいことが最も好ましい。この場合、発光材料の色度座標とLEDの色度座標とを結ぶ線は、第1、第2及び第3の好適な実施の態様に関連して上記に記載されたごとくにしてBBL曲線に接近する。更にまた、図3～6に示された光出力の色度座標を有する発光材料が $(A_{1-x}Gd_x)_3D_5E_{12}:Ce$  (ただし、 $x>0.4$ である)を含むと共に、やはり図3～6に示された色度座標を有するLEDが470nmより大きいピーク発光波長を有する場合、線33、65及び68は図3～6中のBBL曲線21に接近する。

【0033】それに対し、従来のLED-蛍光体白色光照明装置においては、図1及び2中の円1によって示さ

れるごとく、高々465nmの好適なピーク発光波長を有する青色のLEDが使用されていた。更にまた、先行技術においては、高いGd含量を有するYAG:Ce<sup>3+</sup>蛍光体は好ましくなかった。なぜなら、低いGd含量を有する蛍光体に比べ、高いGd含量は装置の効率を低下させるからである。かかる従来の装置においては、蛍光体の色度座標とLEDの色度座標とを結ぶ線はBBL曲線に接近するものではなかった。

【0034】本発明の好適な実施の態様に係る照明装置(下記表1に示す)が、ナカムの教科書中に開示された従来の照明装置(下記表2に示す)と比較される。

【0035】

【表1】

表 1

本発明の装置=478nmの発光波長を有するLED

$+(Y_{0.97}Gd_{0.03}Ce_{0.03})_3Al_5O_{12}$ 蛍光体

色 温 度	BBLからの色度座標距離 (y軸単位)
3800K	0.005
4000K	0.003
5000K	-0.003
6000K	-0.004
7000K	-0.00009
8000K	0.002
10000K	0.004
10800K	0.005

【0036】

【表2】

表 2

従来の装置=460nmの発光波長を有するLED

$+(Y_{0.97}Ce_{0.03})_3Al_5O_{12}$ 蛍光体

色 温 度	BBLからの色度座標距離 (y軸単位)
4000K	0.072
5000K	0.020
5800K	0.005
6000K	0.002
6800K	-0.0005

【0037】表1及び2に示された計算結果からわかる通り、本発明の好適な実施の態様に係る典型的な装置によれば、BBLから0.01y軸単位の範囲内(好ましくは0.005y軸単位の範囲内)に位置する色度座標を持った光は先行技術に係わる装置(約5800～6

800K)の場合よりも広い色温度範囲(約3800～10800K)にわたって放出される。従って、本発明の好適な実施の態様に係る装置は従来の装置よりも発光材料の厚さの誤差及び変動に対して敏感でない。これは、従来の装置に比べ、本発明に従って製造される装置

に関する製造歩留りの向上をもたらす。

【0038】たとえば、装置から放出される光の所望の色が図4中の点31及び49の近傍に位置する色度座標に対応するものと仮定しよう。所望の色を得るためには、発光材料の厚さは所定値に等しくなければならない。しかるに、製造誤差のため、発光材料は所定値よりも大きい厚さを有するように製造されることがある。

【0039】発光材料の厚さが所定値より大きいと、装置の色度座標は発光材料の色度座標とLEDの色度座標とを結ぶ線に沿って発光材料の色度座標の方向に（すなわち、図3中の線3に向かって）移動する。たとえば、第1の好適な実施の態様に係る装置の色度座標は線3に沿って点49から図3中の線3上の点41の方向に移動する。同様に、従来の装置の色度座標は線25に沿って点49から線3上の点11の方向に移動する。

【0040】図3及び4に示されるごとく、適格な白色の装置出力を維持しながら許される所定値からの発光材料の厚さの偏差という点から見ると、第1の好適な実施の態様に係る装置は従来の装置よりも大きい偏差を許す。たとえば、厚さが変動した場合、第1の好適な実施の態様に係る装置の色度座標は適格な白色の装置出力を維持しながら（すなわち、装置の色度座標を線45及び47の間に維持しながら）線33と線45との交点である点53まで移動し得る。それに対し、やはり厚さが変動した場合、従来の装置の色度座標は照明用途のために適格な白色の装置出力を維持しながら点59までしか移動し得ない。厚さがそれ以上に変動すると、従来の装置の出力は照明用途のために不適格なものとなる（すなわち、装置の色度座標は点59と点11との間に存在するが、これは図3及び4中の線45よりも上方に位置することになる）。

【0041】従来の装置に対する同様な利点は、本発明のその他の好適な実施の態様に関しても得ることができるし、また発光材料の厚さが所定値より小さい場合にも得ることができる。このように場合には、色度座標が（線3に向かって）右方に移動する代りに（線43に向かって）左方に移動するだけである。更にまた、本発明の好適な実施の態様に係る装置は、発光材料の組成を変化させることなく、従来の装置よりも広い範囲の色温度に関して照明用途のために適格な白色光を生み出すことができる。

【0042】本発明の好適な実施の態様に係る白色光照明装置は、様々な構造を有し得る。1つの好適な構造が図7に略示されている。かかる照明装置は、LEDチップ71と、そのLEDチップに対して電気的に接続されたリード線73とを含んでいる。リード線73はより太いリードフレーム75によって支持された細い導線から成っていてもよいし、あるいはリードフレームを省略してリード線自体が自立した電極を成していてもよい。リード線73はLEDチップ71に電流を供給し、それ

によってLEDチップ71から光（たとえば、470～500nmの波長を有する青色又は青緑色の光）を放出させる。

【0043】LEDチップ71は、LEDチップ及び封入材料79を包囲するシェル77の内部に封入されている。シェル77は、たとえば、透明なガラス又はプラスチックから成り得る。封入材料は、たとえば、エポキシ樹脂又は高分子材料（たとえば、シリコン）であり得る。とは言え、とは言え、加工を簡略化するためにシェル又は封入材料を省略することもできる。更にまた、シェルを不透明な下方部分とガラス、プラスチック又は開口から成る上方部分とから構成することもできる。更にまた、シェル77は図中に示された形状以外にも任意所望の形状を有することができる。LEDチップ71は、たとえば、リードフレーム75、自立した電極、シェル77の底部、あるいはシェル又はリードフレームに取付けられた台座によって支持することができる。

【0044】かかる照明装置の第1の好適な構造は、発光材料81を含んでいる。発光材料は、LEDチップに隣接して形成された $(A_{1-x}Gd_x)_3D_5E_{12} : Ce$  蛍光体又はシンチレータ（ただし、 $x > 0.4$ である）から成り得る。発光材料81が蛍光体である場合には、かかる蛍光体をLEDチップ71の発光面上に直接に塗布することができる。発光材料81が固形シンチレータである場合には、かかるシンチレータをLEDチップ71の発光面に固定することができる。シェル77及び封入材料79は、白色光83がそれらを透過し得るように透明でなければならない。

【0045】図8は、本発明の第2の好適な構造を示している。発光材料81をLEDチップ71上に形成する代りに封入材料79の内部に散在させた点を除けば、図8の構造は図7の構造と同じである。かかる発光材料81は、封入材料79の単一領域内に散在した蛍光体粉末又は封入材料の全域にわたって散在した蛍光体粉末から成り得る。LEDチップ71から放出された青色又は青緑色の光85が蛍光体81から放出された黄色の光と混合する結果、それは白色光83に見える。

【0046】図9は、本発明の第3の好適な構造を示している。発光材料81をLEDチップ71上に形成する代りにシェル77上に塗布した点を除けば、図9の構造は図7の構造と同じである。かかる発光材料81はシェル77の内面上に塗布された蛍光体であることが好ましいが、所望ならば、シェルの外面上に発光材料を塗布することもできる。蛍光体81は、シェルの表面全体に塗布してもよいし、あるいはシェルの表面の上方部分のみに塗布してもよい。LEDチップ71から放出された青色又は青緑色の光85が蛍光体81から放出された黄色の光と混合する結果、それは白色光83に見える。

【0047】あるいはまた、シェル77をシンチレータ状の発光材料81で作製することもできる。勿論、図7

～9の実施の態様を組合わせることもできるのであって、発光材料を2つ又は3つの位置に配置したり、あるいはその他任意適宜の位置（たとえば、シェルから離隔した位置又はLED中に組込まれた位置）に配置することもできる。

【0048】本発明の第4の好適な実施の態様に従えば、白色光照明装置は次のような方法によって製造される。まず最初に、BBLに接近している線が選択される。たとえば、本発明の第1、第2又は第3の実施の態様に係る線はBBLに接近しているものである。とは言え、BBLに接近しているものであれば、その他の線を選択することもできる。選択された線に基づき、BBLに接近している線上の一点によって表わされる発光スペクトルを有するLEDが形成される。更にまた、選択された線に基づき、BBLに接近している線上の別の点によって表わされる発光スペクトルを有する発光材料が形成される。

【0049】第4の好適な実施の態様に係る方法においては、「形成される」又は「形成する」という用語は、LED及び（又は）発光材料を製造することばかりでなく、既存のLED及び（又は）既存の発光材料を白色光照明装置内に配置することをも意味する。たとえば、装置の一部としてLEDを「形成する」ためには、BBLに接近している線上の一点によって表わされるピーク発光波長を有する既存のLEDを選択又は購入し、次いでそのLEDを白色光照明装置内に配置すればよい。かかるLEDチップは、シェル内に配置してからリード線に接続すればよい。更にまた、BBLに接近している単一の線に基づいて複数のLED及び（又は）発光材料を形成することもできる。たとえば、BBLに接近している単一の線を選択した後、こうして選択された単一の線に基づいて複数のLED及び（又は）発光材料を製造又は選択し、そして照明装置内に配置することができる。

【0050】蛍光体としての形態を有する発光材料は、たとえば、液相（融剤）法又は固態法のごとき任意のセラミック粉末法によって製造することができる。蛍光体の製造方法は、次のような方法から成ることが好ましい。まず最初に、蛍光体材料の原料化合物をるつば又は別の適当な容器（たとえば、ボールミル）内で混合することによって第1の複合粉末が生成される。蛍光体の好適な原料化合物は、化学量論的な量の酸化セリウム（ $\text{CeO}_2$ ）、酸化ガドリニウム（ $\text{GdO}_2$ ）、酸化イットリウム（ $\text{Y}_2\text{O}_3$ ）及びアルミナ（ $\text{Al}_2\text{O}_3$ ）から成る。所望ならば、蛍光体の視感度及び効率を向上させるため、フッ化アンモニウム、フッ化イットリウム（ $\text{YF}_3$ ）及び（又は）フッ化アルミニウム（ $\text{AlF}_3$ ）のごとき融剤を好ましくは生成する蛍光体1モル当り0.02～0.2モル%の濃度で添加することもできる。融剤の使用の結果、YAG:Ce:Gd蛍光体中には少量

の残留フッ素が含まれる。あるいはまた、希土類元素を酸性溶液から共沈させることによって複合希土類酸化物粉末を生成させ、次いでそれをアルミナ粉末及び（所望に応じ） $\text{AlF}_3$ のごとき融剤と混合することもできる。

【0051】次に、こうして配合された第1の粉末を炉又はるつば内において1000～1600℃で約2～10時間にわたり（好ましくは1500℃で6時間にわたり）焼結することによって焼結体又はケーキが形成される。 $\text{AlF}_3$ 融剤が使用される場合、かかる焼結は還元雰囲気（たとえば、生成ガス又は木炭蒸気）中において行うことが好ましい。次いで、焼結体を粉砕することによって第2の粉末が生成される。第2の粉末は約6ミクロンの平均粒度を有するように粉砕することが好ましい。なお、第2の粉末はプロパノール又は水を摩砕媒体として摩砕し、次いで乾燥することが好ましい。とは言え、その他の摩砕媒体（たとえば、メタノール）を使用することもできる。

【0052】次いで、第2の粉末が白色光照明装置内に配置される。その際には、本発明の第1、第2及び第3の好適な構造に関連して上記に記載された通り、第2の粉末をLEDチップ上に配置するか、封入材料中に散在させるか、あるいはシェルの表面上に塗布することができる。なお、第2の粉末と液体とから成る懸濁液をLEDチップ上又はシェル表面上に塗布することが好ましい。かかる懸濁液はまた、所望に応じ、溶剤に溶解された結合剤を含有することができる。かかる結合剤は、ニトロセルロースのごとき有機材料を酢酸ブチル、酢酸アミル、メチルプロパノール又はプロピレングリコールモノメチルエーテルアセテートのごとき溶剤中に1～2%の変性エタノールと共に90～95%の濃度で溶解したものから成ることが好ましい。かかる結合剤は、粉末粒子同士の付着力及びLED又はシェルに対する粉末粒子の付着力を向上させる。とは言え、所望ならば、加工を簡略化するために結合剤を省略することもできる。塗布後、懸濁液を乾燥すると共に、加熱によって結合剤を蒸発させることができる。塗布された第2の粉末は、乾燥によって溶剤を除去した後は蛍光体として作用する。

【0053】蛍光体を封入材料中に散在させる場合には、蛍光体を第2の粉末として重合体前駆物質に添加し、次いで重合体前駆物質を硬化させて固体の重合体材料を恵すればよい。あるいはまた、第2の粉末をエポキシ樹脂封入材料中に混入してもよい。更には、蛍光体を散在させるためのその他の方法を使用することもできる。

【0054】シンチレータとしての形態を有する発光材料は、任意のシンチレータ製造方法によって製造することができる。たとえば、シンチレータはチョクラスキー法、浮遊帯域法又はその他の結晶成長法によって製造することができる。次に、かかるシンチレータをLED

チップ上に配置するか、あるいはシェル又はシェルの上方部分として使用すればよい。

【0055】上記の説明においては、白色光照明装置の放射源は半導体発光ダイオードとして記載された。しかるに、本発明の放射源は半導体発光ダイオードのみに限定されない。たとえば、白色光照明装置はレーザダイオード、有機発光ダイオード（OLED）、プラズマディスプレイ装置又は蛍光灯を含むことができる。放射源は、電極から放出された荷電粒子との衝突に反応して放射性的放電を生み出すガスから成り得る。かかるガスから放出された放射が装置の一部分上に塗布された発光材料に入射すると、発光材料は黄色の光を放出する。かかる黄色の光がガスから放出された放射に混合すると、それは観察者にとって白色に見える。

【0056】更にまた、上記のごとき好適な装置は単一の放射源及び単一の発光材料を含んでいる。しかしながら、所望ならば、放出される白色光を改善するため、あるいは放出される白色光を異なる色の光と組み合わせるため、相異なる色度座標を有する複数の放射源及び（又は）複数の発光材料を装置内に使用することもできる。たとえば、白色光照明装置をディスプレイ装置内の赤色、緑色及び（又は）青色発光ダイオードと組合わせて使用することができる。

【0057】以上、例示を目的として好適な実施の態様を説明した。なお、上記の説明が本発明の範囲を制限するものと解すべきでない。従って、本発明の精神及び範囲から逸脱することなしに様々な変更態様が可能である

ことは当業者にとって容易に理解されよう。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】従来の照明装置のCIE色度図である。

【図2】従来の照明装置のCIE色度図である。

【図3】本発明の好適な実施の態様に係る照明装置のCIE色度図である。

【図4】本発明の好適な実施の態様に係る照明装置のCIE色度図の中心領域の拡大図である。

【図5】本発明の好適な実施の態様に係る照明装置のCIE色度図である。

【図6】本発明の好適な実施の態様に係る照明装置のCIE色度図の中心領域の拡大図である。

【図7】本発明の照明装置の好適な構造を示す概略断面図である。

【図8】本発明の照明装置の好適な構造を示す概略断面図である。

【図9】本発明の照明装置の好適な構造を示す概略断面図である。

#### 【符号の説明】

- 71 LEDチップ
- 73 リード線
- 75 リードフレーム
- 77 シェル
- 79 封入材料
- 81 発光材料
- 83 白色光
- 85 青色又は青緑色の光

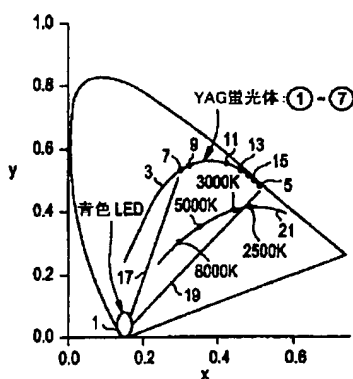
【図1】

【図2】

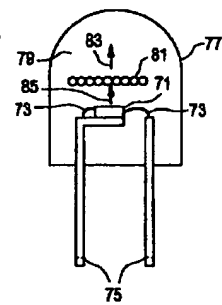
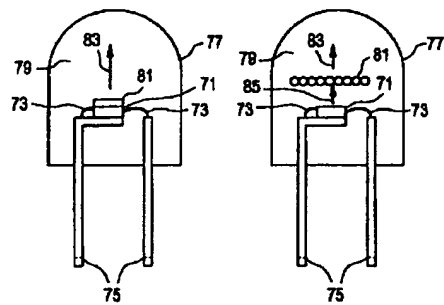
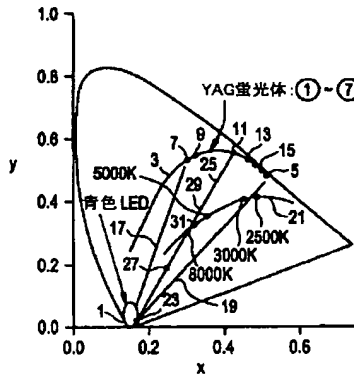
【図7】

【図8】

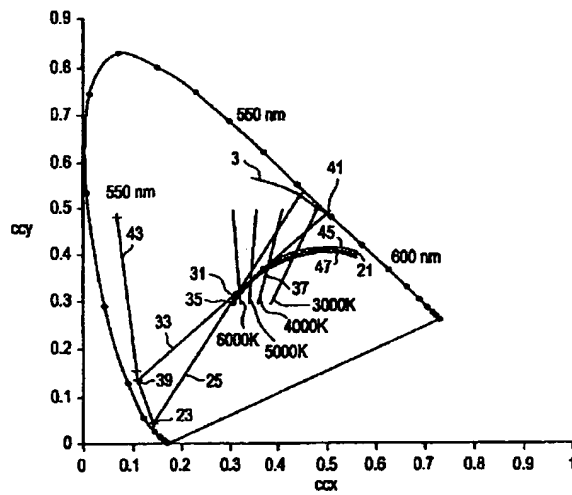
先行技術



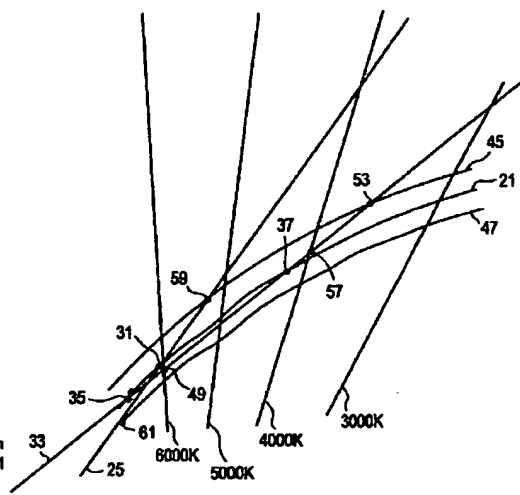
先行技術



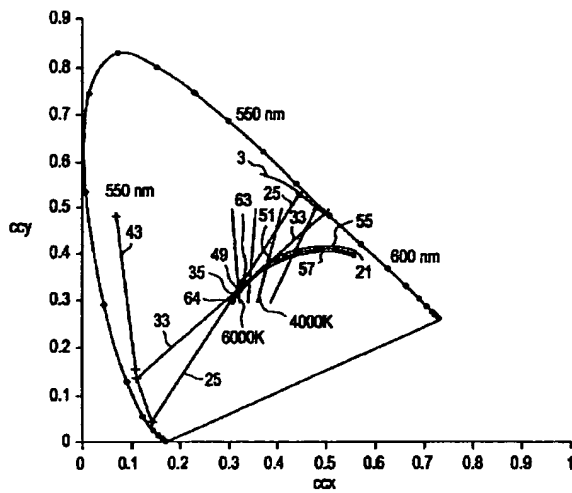
【図3】



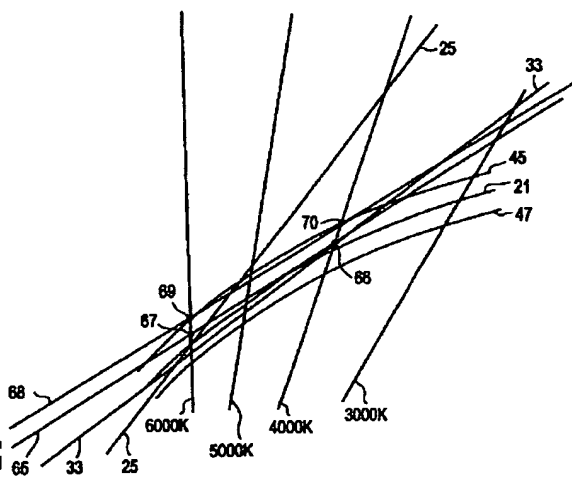
【図4】



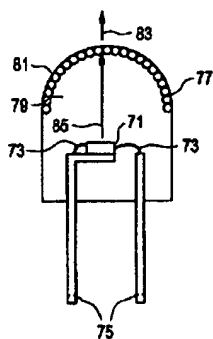
【図5】



【図6】



【図9】



フロントページの続き

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テマコード(参考)
H 0 5 B 33/14		H 0 5 B 33/14	A
// F 2 1 Y 101:02		F 2 1 Y 101:02	
(72)発明者	アロク・マニ・スリバスタバ アメリカ合衆国、ニューヨーク州、ニスカ ユナ、フィロメナ・ロード、1378番	(72)発明者	ホリー・アン・コマンゾ アメリカ合衆国、ニューヨーク州、スケネ クタディ、イースタン・パークウェイ、 2506番

【 外国語明細書 】

## **1. Title of Invention**

### **WHITE LIGHT ILLUMINATION SYSTEM WITH IMPROVED COLOR OUTPUT**

## **2. Claims**

1. A white light illumination system comprising a radiation source and a luminescent material, wherein:
  - an emission spectrum of the radiation source represents a first point on a CIE chromaticity diagram;
  - an emission spectrum of the luminescent material represents a second point on the CIE chromaticity diagram; and
  - a first line connecting the first point and the second point approximates a Black Body Locus on the CIE chromaticity diagram.
2. The system of claim 1, wherein the radiation source comprises a light emitting diode.
3. The system of claim 2, wherein the first line intersects the Black Body Locus twice.
4. The system of claim 2, wherein the first line is tangential to the Black Body Locus.
5. The system of claim 2, wherein:
  - a third point and a fourth point on the first line are located less than 0.01 y-units away from the Black Body Locus on the CIE chromaticity diagram;
  - the third point corresponds to a first color temperature; and
  - the fourth point corresponds to a second color temperature which is at least 2000 K greater than the first color temperature.

6. The system of claim 5, wherein the third point and the fourth point on the first line are located less than 0.005 y-units away from the Black Body Locus on the CIE chromaticity diagram.
7. The system of claim 6, wherein the first color temperature is 4000 K and the second color temperature is 6000K.
8. The system of claim 2, wherein:
  - a) the luminescent material comprises:  
 $(A_{1-x}Gd_x)_3D_5E_{12}:Ce$ ,  
wherein A comprises at least one of Y, Lu, Sm and La;  
D comprises at least one of Al, Ga, Sc and In;  
E comprises oxygen; and  
 $x > 0.4$ ; and
  - b) a peak emission wavelength of the light emitting diode is greater than 470 nm.
9. The system of claim 8, wherein the luminescent material comprises  $(Y_{1-x-z}Gd_xCe_z)_3Al_5O_{12}$ ;  $0.7 > x > 0.4$ ; and  $0.1 > z > 0$ .
10. The system of claim 9, wherein the luminescent material further contains fluorine.
11. The system of claim 9, wherein the luminescent material comprises a  $(Y_{0.37}Gd_{0.6}Ce_{0.03})_3Al_5O_{12}$  phosphor.
12. The system of claim 8 wherein the light emitting diode contains at least one semiconductor layer comprising GaN, ZnSe and SiC having a peak emission wavelength greater than 470 nm but less than 500 nm.



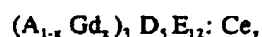
13. The system of claim 12, wherein the light emitting diode peak emission wavelength is 475 to 480 nm.
14. The system of claim 12, wherein the light emitting diode comprises an InGaN p-n junction.
15. The system of claim 8, wherein:  
the luminescent material comprises  $(Y_{1-x-z}Gd_xCe_z)_3Al_5O_{12}$ ;  
 $0.7 > x > 0.4$ ; and  $0.1 > z > 0$ ; and  
the light emitting diode peak emission wavelength is greater than 470 nm but less than 500 nm.
16. The system of claim 15, further comprising a shell containing the light emitting diode and an encapsulating material between the shell and the light emitting diode, and wherein:
- a) the luminescent material is phosphor coated over a surface of the light emitting diode;
  - b) the luminescent material is phosphor interspersed in the encapsulating material;
  - c) the luminescent material is a phosphor coated onto the shell; or
  - d) the luminescent material is a scintillator overlying a surface of the light emitting diode.
17. The system of claim 2, wherein radiation emitted by the system approximates the Black Body Locus on the CIE chromaticity diagram substantially independent of a thickness of the luminescent material for color temperatures ranging from 4000 K to 6000 K.

18. The system of claim 2, wherein the CIE color coordinates of a radiation emitted by the system range from  $x=0.31$  and  $y=0.33$  to  $x=0.44$  and  $y=0.4$ .

19. The system of claim 1, wherein the radiation source comprises one of a laser diode, an organic light emitting diode or a radiative gas discharge in a plasma display or in a fluorescent lamp.

20. A white light illumination system comprising:

a) a luminescent material, comprising:



wherein A comprises at least one of Y, Lu, Sm and La;

D comprises at least one of Al, Ga, Sc and In;

E comprises oxygen; and

$x > 0.4$ ; and

b) a light emitting diode having a peak emission wavelength greater than 470 nm.

21. The system of claim 20, wherein the luminescent material comprises  $(Y_{1-x-z}Gd_xCe_z)_2Al_3O_{12}$ ;  $0.7 > x > 0.4$ ; and  $0.1 > z > 0$ .

22. The system of claim 21, wherein the luminescent material further contains fluorine.

23. The system of claim 21, wherein the luminescent material comprises a  $(Y_{0.37}Gd_{0.6}Ce_{0.03})_2Al_3O_{12}$  phosphor.

24. The system of claim 20, wherein the light emitting diode comprises an InGaN p-n junction having a peak emission wavelength greater than 470 nm but less than 500 nm.

25. The system of claim 24, wherein the light emitting diode peak emission wavelength is 475 to 480 nm.

26. The system of claim 20, wherein:

the luminescent material comprises  $(Y_{1-x-z}Gd_xCe_z)_3Al_5O_{12}$ ;

$0.7 > x > 0.4$ ; and  $0.1 > z > 0$ ; and

the light emitting diode peak emission wavelength is greater than 470 nm but less than 500 nm.

27. The system of claim 26, further comprising a shell containing the light emitting diode and an encapsulating material between the shell and the light emitting diode, and wherein:

a) the luminescent material is a phosphor coated over a surface of the light emitting diode;

b) the luminescent material is a phosphor interspersed in the encapsulating material;

c) the luminescent material is a phosphor coated onto the shell; or

d) the luminescent material is a scintillator overlying a surface of the light emitting diode.

28. The system of claim 20, wherein the radiation emitted by the system approximates a Black Body Locus on a CIE chromaticity diagram substantially independent of a thickness of the luminescent material for color temperatures ranging from 4000 K to 6000 K.

29. The system of claim 20, wherein CIE color coordinates of a radiation emitted by the system range from  $x=0.31$  and  $y=0.33$  to  $x=0.44$  and  $y=0.4$ .

30. A method of making a white light illumination system containing a radiation source and a luminescent material, comprising:

selecting a first line which approximates a Black Body Locus on a CIE chromaticity diagram;

forming the radiation source, wherein an emission spectrum of the radiation source is represented by a first point on the first line; and

forming the luminescent material, wherein an emission spectrum of the luminescent material is represented by a second point on the first line.

31. The method of claim 30, wherein the radiation source comprises a light emitting diode.

32. The method of claim 31, wherein the first line intersects the Black Body Locus twice.

33. The method of claim 31, wherein the first line is tangential to the Black Body Locus.

34. The method of claim 31, wherein:

a third point and a fourth point on the first line are located less than 0.01 y-units away from the Black Body Locus on the CIE chromaticity diagram;

the third point corresponds to a first color temperature; and

the fourth point corresponds to a second color temperature which is at least 2000 K greater than the first color temperature.

35. The method of claim 34 wherein:

the third point and the fourth point on the first line are located less than 0.005 y-units away from the Black Body Locus on the CIE chromaticity diagram.

36. The method of claim 35, wherein the first color temperature is 4000 K and the second color temperature is 6000K.
37. The method of claim 31, wherein:
- a) the luminescent material comprises:  
 $(A_{1-x} Gd_x)_3 D_3 E_{12} : Ce$ ,  
wherein A comprises at least one of Y, Lu, Sm and La;  
D comprises at least one of Al, Ga, Sc and In;  
E comprises oxygen; and  
 $x > 0.4$ ; and
- b) a peak emission wavelength of the light emitting diode is greater than 470 nm.
38. The method of claim 37, wherein:  
the luminescent material comprises  $(Y_{1-x-z} Gd_x Ce_z)_3 Al_3 O_{12}$ ;  
 $0.7 > x > 0.4$ ; and  $0.1 > z > 0$ ; and  
the light emitting diode peak emission wavelength is greater than 470 nm but less than 500 nm.
39. The method of claim 38, wherein the luminescent material comprises a  $(Y_{0.37} Gd_{0.6} Ce_{0.03})_3 Al_3 O_{12}$  phosphor and the light emitting diode comprises an InGaN p-n junction having a peak emission wavelength of 475 to 480 nm.
40. The method of claim 37, wherein the step of forming the luminescent material comprises:  
mixing a  $Y_2O_3$  powder, a  $CeO_2$  powder, an  $Al_2O_3$  powder, a  $GdO_2$  powder and an AlF<sub>3</sub> flux to form a first powder;

sintering the first powder in a reducing atmosphere to form a sintered body; and  
converting the sintered body into a second powder.

41. The method of claim 40, wherein:  
the step of forming the light emitting diode comprises:  
placing a light emitting diode into a shell; and  
filling the shell with an encapsulating material;  
and wherein the step of forming the luminescent material further comprises:
- a) coating a suspension of the second powder and a solvent over a surface of the light emitting diode and drying the suspension;
  - b) interspersing the second powder in the encapsulating material; or
  - c) coating a suspension of the second powder and a solvent onto the shell and drying the suspension.

42. The method of claim 31, wherein the radiation emitted by the system approximates the Black Body Locus on the CIE chromaticity diagram substantially independent of a thickness of the luminescent material for color temperatures ranging from 4000 K to 6000 K.

43. The method of claim 31, wherein the step of forming the light emitting diode comprises:  
selecting an existing light emitting diode having an emission spectrum represented by the first point on the first line; and  
placing the light emitting diode into the illumination system.

44. The method of claim 31, wherein the step of forming the luminescent material comprises:

selecting an existing luminescent material having an emission spectrum represented by the second point on the first line; and

placing the luminescent material into the illumination system.

45. The method of claim 31, further comprising forming at least one of plural light emitting diodes and plural luminescent materials based on a single step of selecting the first line which approximates the Black Body Locus.

46. The method of claim 30, wherein the radiation source comprises one of an organic light emitting diode, a laser diode or a radiative gas discharge in a plasma display or in a fluorescent lamp.

### 3. Detailed Description of Invention

#### BACKGROUND OF THE INVENTION

This invention relates generally to a white light illumination system, and specifically to a ceramic YAG:Ce:Gd phosphor for converting blue light emitted by a light emitting diode ("LED") to white light.

White light emitting LEDs are used as a backlight in liquid crystal displays and as a replacement for small conventional lamps and fluorescent lamps. As discussed in chapter 10.4 of "The Blue Laser Diode" by S. Nakamura et al., pages 216-221 (Springer 1997), incorporated herein by reference, white light LEDs are fabricated by forming a ceramic phosphor layer on the output surface of a blue emitting semiconductor LED. Conventionally, the blue LED is an InGaN single quantum well LED and the phosphor is a cerium doped yttrium aluminum garnet ("YAG"),  $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}^{3+}$ . The blue light emitted by the LED excites the phosphor, causing it to emit yellow light. The blue light emitted by the LED is transmitted through the phosphor and is mixed with the yellow light emitted by the phosphor. The viewer perceives the mixture of blue and yellow light as white light.

The chromaticity coordinates of the blue LED, the yellow YAG phosphor and the white combined output of the LED and the phosphor may be plotted on the well known CIE chromaticity diagram, as shown in Figure 1. The chromaticity coordinates and the CIE chromaticity diagram are explained in detail in several text books, such as pages 98-107 of K. H. Butler, "Fluorescent Lamp Phosphors" (The Pennsylvania State University Press 1980) and pages 109-110 of G. Blasse et al., "Luminescent Materials" (Springer-Verlag 1994), both incorporated herein by reference. As shown in Figure 1, chromaticity coordinates of the prior art blue LEDs used for white emission lie in the circle 1 on the CIE chromaticity diagram in



Figure 1. In other words, the chromaticity coordinates of the LED will be represented by a single point within circle 1, the location of the particular point depending on the peak emission wavelength of the LED.

The chromaticity coordinates of the YAG:Ce<sup>3+</sup> phosphor are represented by a point along line 3 in Figure 1, depending on the level of Gd dopant on the Y lattice site and/or the level of Ga dopant on the Al lattice site. For example, the chromaticity coordinates of the YAG phosphor containing a high level of Gd and/or a low level of Ga dopant may be located at point 5, while the chromaticity coordinates of the YAG phosphor containing a low level of Gd and/or a high level of Ga dopant may be located at point 7. Chromaticity coordinates of the YAG phosphor containing intermediate levels of Gd and/or Ga dopants may be located at any point along line 3 between points 5 and 7, such as at points 9, 11, 13 or 15, for example.

The chromaticity coordinates of the combined output of the blue LED and the YAG phosphor may be varied within a fan shaped region on the CIE chromaticity diagram in Figure 1, bordered by lines 17 and 19. In other words, the combined chromaticity coordinates of the output of the LED and the phosphor may be any point inside the area bordered by circle 1, line 3, line 17 and line 19 in Figure 1, as described on page 220 of the Nakamura et al. text book. However, the LED - phosphor system described by Nakamura et al. suffers from several disadvantages.

As shown in Figure 1, the CIE chromaticity diagram contains the well known Black Body Locus ("BBL"), represented by line 21. The chromaticity coordinates (i.e., color points) that lie along the BBL obey Planck's equation:  $E(\lambda) = A\lambda^{-5} / (e^{B/T} - 1)$ , where  $E$  is the emission intensity,  $\lambda$  is the emission wavelength,  $T$  the color temperature of the black body and  $A$  and  $B$  are constants. Various values of the color temperature,  $T$ , in degrees Kelvin, are shown on the

BBL in Figure 1. Furthermore, points or color coordinates that lie on or near the BBL yield pleasing white light to a human observer. Typical white light illumination sources are chosen to have chromaticity points on the BBL with color temperatures in the range between 2500K to 7000K. For example, lamps with a point on the BBL with a color temperature of 3900 K are designated "natural white," a color temperature of 3000 K are designated "standard warm white," and so on. However, points or color coordinates that lie away from the BBL are less acceptable as a white light to the human observer. Thus, the LED - phosphor system shown in Figure 1 contains many points or chromaticity coordinates between lines 17 and 19 that do not yield an acceptable white light for lighting applications.

In order to be useful as a white light source, the chromaticity coordinates LED - phosphor system must lie on or near to the BBL. The color output of the LED - phosphor system varies greatly due to frequent, unavoidable, routine deviations from desired parameters (i.e., manufacturing systematic errors) during the production of the phosphor.

For example, the color output of the LED - phosphor system is very sensitive to the thickness of the phosphor. If the phosphor is too thin, then more than a desired amount of the blue light emitted by the LED will penetrate through the phosphor, and the combined LED - phosphor system light output will appear bluish, because it is dominated by the output of the LED. In this case, the chromaticity coordinates of the output wavelength of the system will lie close to the LED chromaticity coordinates and away from the BBL on the CIE chromaticity diagram. In contrast, if the phosphor is too thick, then less than a desired amount of the blue LED light will penetrate through the thick phosphor layer. The combined LED - phosphor system will then appear yellowish, because it is dominated by the yellow output of the phosphor.

Therefore, the thickness of the phosphor is a critical variable affecting the color output of the system. Unfortunately, the thickness of the phosphor is difficult to control during large scale production of the LED - phosphor system, and variations in phosphor thickness often result in the system output being unsuitable for white light lighting applications or appearing non-white (i.e., bluish or yellowish), which leads to an unacceptably low LED - phosphor system manufacturing yield.

Figure 2 illustrates a CIE chromaticity diagram containing the chromaticity coordinates at point 11 of a prior art YAG:Ce<sup>3+</sup> phosphor layer that is placed over a blue LED having chromaticity coordinates at point 23. Thus, the chromaticity coordinates of this system will lie along line 25 connecting points 11 and 23 in Figure 2. If the phosphor layer is thinner than required to produce white light, then too much of the blue LED light will penetrate through the phosphor layer and the chromaticity coordinates of the system light output will lie near the LED coordinates, such as at point 27, below the BBL. The output of this system will appear bluish. If the phosphor layer is thicker than required to produce white light, then too little of the LED light will be absorbed by the phosphor, and the chromaticity coordinates of the system will lie near the phosphor coordinates, such as at point 29, above the BBL. The output of the system will appear yellowish. The chromaticity coordinates of the system will lie near or on the BBL at point 31 only if the thickness of the phosphor layer is almost exactly equal to the thickness required to produce acceptable white light. Thus, Figure 2 illustrates the sensitivity of the system color output to variations in the phosphor layer thickness.

Furthermore, the prior art LED - phosphor system suffers from a further deficiency. In order to obtain a white light illumination system with different color temperatures that have color coordinates on or near the BBL (i.e., a system that yields an acceptable white light for illumination purposes), the composition of the phosphor has to be changed. For example, if a prior art system includes a phosphor

having a composition whose color coordinates are located at point 11 in Figure 2, then the LED - phosphor system containing this particular phosphor will have color coordinates near the BBL (i.e., near point 31 on line 27) only for a narrow color temperature range between about 5800 K and 6800 K. The system with this particular phosphor composition does not yield an acceptable white light for lighting applications for color temperatures outside this range. Therefore, the phosphor composition must be changed in order to obtain a system which yields an acceptable white light for lighting applications for desired color temperatures outside the range of 5800 K to 6800 K. The required change in the phosphor composition increases the cost and complexity of the manufacturing process. The present invention is directed to overcoming or at least reducing the problems set forth above.

#### BRIEF SUMMARY OF THE INVENTION

In accordance with one aspect of the present invention, there is provided a white light illumination system comprising a radiation source and a luminescent material, wherein an emission spectrum of the radiation source represents a first point on a CIE chromaticity diagram, an emission spectrum of the luminescent material represents a second point on the CIE chromaticity diagram and a first line connecting the first point and the second point approximates a Black Body Locus on the CIE chromaticity diagram.

In accordance with another aspect of the present invention, there is provided a white light illumination system, comprising a luminescent material, comprising  $(A_{1-x}Gd_x)_2D_3E_{12}:Ce$ , wherein A comprises at least one of Y, Lu, Sm and La, D comprises at least one of Al, Ga, Sc and In, E comprises oxygen,  $x > 0.4$ , and a light emitting diode having a peak emission wavelength greater than 470 nm.

In accordance with another aspect of the present invention, there is provided a method of making a white light illumination system containing a radiation source and a luminescent material, comprising selecting a first line which approximates a Black Body Locus on a CIE chromaticity diagram, forming the radiation source, wherein an emission spectrum of the radiation source is represented by a first point on the first line and forming the luminescent material, wherein an emission spectrum of the luminescent material is represented by a second point on the first line.

#### DETAILED DESCRIPTION OF THE INVENTION

In view of the problems in the prior art, it is desirable to obtain a white light radiation source - luminescent material illumination system whose color output is less sensitive to errors during the system manufacturing process, especially errors and variations in the thickness of the luminescent material. Furthermore, it is

desirable to obtain a white light radiation source - luminescent material illumination system capable of providing an acceptable white light for lighting purposes for a broad range of color temperatures without changing the composition of the luminescent material. Preferably, the radiation source comprises an LED.

The present inventors have discovered that a color output of the LED - luminescent material system is less sensitive to manufacturing errors when the line connecting a point representing the LED chromaticity coordinates with a point representing the luminescent material chromaticity coordinates approximates the BBL on the CIE chromaticity diagram. Furthermore, such a system is capable of providing an acceptable white light for lighting purposes for a broad range of color temperatures without changing the composition of the luminescent material.

The term luminescent material includes a luminescent material in powder form (a phosphor) and in solid body form (scintillator). The term "LED chromaticity coordinates" refers to the chromaticity coordinates of the LED emission spectrum on the CIE chromaticity diagram. The term "luminescent material chromaticity coordinates" refers to the chromaticity coordinates of the emission spectrum of the luminescent material on the CIE chromaticity diagram.

The line connecting the LED and luminescent material chromaticity coordinates may approximate the BBL curve in many different ways. In one preferred embodiment of the present invention, a line which intersects the BBL curve twice approximates the BBL curve, as illustrated in Figures 3 and 4. Figure 4 is a close up of the middle portion of Figure 3. For example, a line 33 may intersect the BBL curve 21 twice at points 35 and 37. Line 33 connects the LED chromaticity coordinates 39 to the luminescent material chromaticity coordinates 41. Of course, line 33 is shown for illustration purposes only. There may be many other lines which connect various LED chromaticity coordinates to various luminescent material chromaticity coordinates and which intersect the BBL curve

twice. For example, the slope of the line may be varied by varying the peak emission wavelength, and thus the chromaticity coordinates, of the LED along line 43 or by varying the peak luminescent material emission wavelength along line 3.

A white light source that is considered acceptable for lighting applications is typically within  $\pm 0.01$  y-units of the BBL and preferably within  $\pm 0.005$  y-units of the BBL. A "y-unit" is a unit along the y-axis of the CIE chromaticity diagram. A line, such as line 33, which intersects the BBL curve twice approximates the BBL curve because many points on this line are 0.01 y-units or less away from the BBL curve, and preferably 0.005 y-units or less away from the BBL curve.

For example, any point on line 33 between about 7000K and 3500K appears white to the human observer and corresponds to an acceptable white light source, because these points are located between lines 45 and 47, which delineate the space on the CIE chromaticity diagram containing chromaticity coordinates which are 0.01 y-units or less from the BBL curve 21.

Preferably, the line 33 intersects the BBL curve such that it contains two points which correspond to color temperatures at least 2000 K apart and which are 0.01 y-units or less from the BBL curve 21, as illustrated in Figure 4. For example, points 49 and 51 corresponding to temperatures of about 6000 K and 4000 K, respectively, are located on line 33, 0.01 y-units or less from the BBL curve 21. The points that lie on line 33 between points 49 and 51 are also located between lines 45 and 47, within 0.01 y-units from the BBL curve, as illustrated in Figure 4. Thus, all these points correspond to an acceptable white light source for lighting applications. Furthermore, it is possible to obtain a white light illumination system with a broad range of color temperatures without changing the composition of the luminescent material, by selecting a system having color coordinates at any point on line 33 corresponding to color temperatures of about 10,800K and 3800K (point 53).

Most preferably, the line 33 intersects the BBL curve such that it contains two points which correspond to color temperatures at least 2000 K apart and which are 0.005 y-units or less from the BBL curve 21, as illustrated in Figure 5. For example, points 49 and 51 corresponding to temperatures of about 6000 K and 4000 K, respectively, are located on line 33, 0.005 y-units or less from the BBL curve 21. The points that lie on line 33 between points 49 and 51 are also located between lines 55 and 57, within 0.005 y-units from the BBL curve, as illustrated in Figure 5. Thus, all these points correspond to an acceptable white light source for lighting applications.

In contrast, the majority of color coordinates between 4000K and 6000K along the prior art line 25 are not located within 0.01 y-units from the BBL. For example, only the color coordinates between about 5200K (point 59 in Figure 4) and 6400 K (point 61 in Figure 4) on the prior art line 25 are located within 0.01 y-units from the BBL. Furthermore, only the color coordinates between about 5770K (point 63 in Figure 5) and 6780 K (point 64 in Figure 5) on the prior art line 25 are located within 0.005 y-units from the BBL. The accessible color coordinates with correlated color temperature below 5200K (above point 59) are located more than 0.01 y-units from the BBL (i.e., above line 45 delineating the 0.01 y-unit distance from the BBL). The points on line 25 above point 59, therefore, do not correspond to an acceptable white light source for lighting applications. Therefore, the prior art system is more sensitive to manufacturing error than the system of the first preferred embodiment of the present invention. Furthermore, the composition of the phosphor of the prior art system has to be changed in order to obtain a system having color coordinates corresponding to color temperatures outside the 5200 to 6400 K range, that is acceptable for lighting applications.

In a second preferred embodiment of the present invention, a line which approximates the BBL curve is tangential to the BBL curve, as illustrated in Figure 6. For example, line 65 is tangential to the BBL curve 21. Of course, line 65 is



shown for illustration purposes only. There may be many other lines which connect various LED chromaticity coordinates to various luminescent material chromaticity coordinates and which are tangential to the BBL curve. For example, the slope of the line may be varied by varying the peak emission wavelength of the LED along line 43 or by varying the luminescent material peak emission wavelength along line 3.

A line, such as line 65, which is tangential to the BBL curve approximates the BBL curve because many points on this line are 0.01 y-units or less, and preferably 0.005 y-units or less away from the BBL curve. For example, any point on line 65 between about 6500K and 3500K corresponds to an acceptable white light, because these points are located between lines 45 and 47. Preferably, the line 65 is tangential to the BBL curve such that it contains two points which correspond to color temperatures at least 2000 K apart and which are 0.01 y-units or less, and preferably 0.005 y-units or less from the BBL curve 21. For example, the points that lie on line 65 on the CIE chromaticity diagram between points corresponding to color temperatures of 4000 K and 6000 K would be located between lines 45 and 47 in Figure 6. In other words, all the points on line 65 between points 66 and 67 are located within 0.01 y-units from the BBL, i.e., between lines 45 and 47, as illustrated in Figure 6. Thus, all points on line 65 between points 66 and 67 correspond to white light acceptable for lighting applications.

In a third preferred embodiment of the present invention, a line which approximates the BBL curve contains two points which are at least 2000 K apart and are located 0.01 y-units or less from the BBL curve. For example, as illustrated in Figure 6, line 68 contains two points, 69 and 70, which correspond to color temperatures of 6000 and 4000 K, respectively, which are located 0.01 y-units or less from the BBL curve (i.e., points 69 and 70 are located between lines 45 and 47). Of course, line 68 is shown for illustration purposes only. There may be many other lines which connect various LED chromaticity coordinates to various

luminescent material chromaticity coordinates and which contain two points at least 2000 K apart that are 0.01 y-units or less from the BBL curve. For example, the slope of the line may be varied by varying the peak emission wavelength of the LED along line 43 or by varying the peak luminescent material emission wavelength along line 3. Furthermore, a line which approximates the BBL curve may be located between the BBL curve 21 and line 47.

It should be noted that lines may approximate the BBL curve in ways other than described in the first, second and third preferred embodiments. Preferably, the CIE color coordinates of the radiation emitted by the LED - luminescent material system range from  $x=0.31$  and  $y=0.33$  ( $T=6700$  K or "daylight") to  $x=0.44$  and  $y=0.4$  ( $T=3000$  K or "standard warm white"). However, the radiation emitted by the system may have other coordinates that are considered to correspond to white color, if desired.

In a first preferred aspect of the present invention, the luminescent material comprises  $(A_{1-x}Gd_x)_2D_3E_{12}Ce$ , where A comprises at least one of Y, Lu, Sm and La; D comprises at least one of Al, Ga, Sc and In; E comprises oxygen and  $x>0.4$ . In a second preferred aspect of the present invention, the light emitting diode preferably comprises a light emitting diode having a peak emission wavelength greater than 470 nm. Preferably, the peak emission wavelength is between 470 and 500 nm and most preferably, between 475 and 480 nm, such as 478 nm. In a third preferred aspect of the present invention, the white light illumination system contains the luminescent material of the first preferred aspect and the light emitting diode of the second preferred aspect.

In the luminescent material of the first preferred aspect, Ce ions act as the activator ions, and are responsible for the emission of yellow light from the luminescent material. The Gd ions affect the color (i.e., the color coordinates) of the output of the illumination system. The present inventors have determined that

when the atomic ratio (i.e., "x") of Gd ions is greater than 0.4, the color coordinates of the light emitted from the luminescent material allow a line connecting these coordinates to the LED color coordinates to approximate the BBL curve. For example, the  $(\text{Al}_{1-x}\text{Gd}_x)_3\text{D}_3\text{E}_{12}:\text{Ce}$  luminescent material having  $x > 0.4$  emits light with color coordinates approximately between points 5 and 15 in Figure 1. The high Gd content decreases the efficiency of the luminescent material by a few percent compared to a luminescent material containing little or no Gd. However, the improvement in the illumination system manufacturing yield achievable by increasing the Gd content offsets the small decrease in system efficiency.

Preferably, the luminescent material contains no or trace amounts of Ga and comprises  $(\text{Y}_{1-x-z}\text{Gd}_x\text{Ce}_z)_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ , where  $0.7 > x > 0.4$  and  $0.1 > z > 0$ . However, the value of "x" may be increased up to 0.8, if desired. The luminescent material may contain other elements, such as small amounts of fluorine, if a fluorine based flux such as ammonium fluoride,  $\text{YF}_3$  or  $\text{AlF}_3$  is used during the fabrication of the luminescent material. Most preferably, the luminescent material comprises a  $(\text{Y}_{0.37}\text{Gd}_{0.6}\text{Ce}_{0.03})_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  phosphor. However, the luminescent material may comprise a scintillator, if desired.

The LED of the second preferred aspect may comprise any LED having a peak emission wavelength of greater than 470 nm and which is capable of producing white light when its emitted radiation is directed onto a luminescent material. In other words, the LED may comprise a semiconductor diode based on any suitable III-V, II-VI or IV-IV semiconductor layers. Preferably, the LED may contain at least one semiconductor layer comprising GaN, ZnSe or SiC. Most preferably, the LED comprises a single quantum well LED having an InGaN p-n junction having a peak emission wavelength greater than 470 nm but less than 500 nm. However, multiple quantum well LEDs or LEDs without quantum wells could also be used. A peak emission wavelength between 475 and 480 nm, such as 478 nm is most

preferred. A peak emission wavelength between 470 and 500 nm along line 43 in Figures 3 and 5 allows a line connecting the LED color coordinates to the luminescent material color coordinates to approximate the BBL curve.

Most preferably, according to the third preferred aspect of the present invention, the luminescent material comprises  $(A_{1-x}Gd_x)_2D_3E_{12}:Ce$  where  $x > 0.4$  and the LED peak emission wavelength is greater than 470 nm to allow a line connecting the color coordinates of the luminescent material and the LED to approximate the BBL curve, as described above with respect to the first, second and third preferred embodiments. Furthermore, the luminescent material whose light output color coordinates are illustrated in Figures 3-6 comprises  $(A_{1-x}Gd_x)_2D_3E_{12}:Ce$  where  $x > 0.4$ , and the LED whose color coordinates are also illustrated in Figures 3-6 has a peak emission wavelength greater than 470 nm to allow lines 33, 65 and 68 to approximate the BBL curve 21 in Figures 3-6.

In contrast, the prior art LED - phosphor white light illumination systems utilized blue LEDs with a preferred peak emission wavelength of at most 465 nm, as shown by circle 1 in Figures 1 and 2. Furthermore,  $YAG:Ce^{3+}$  phosphors with a high Gd content were not preferred in the prior art because the high Gd content decreased the efficiency of the system by a few percent compared to phosphors with low Gd content. In such prior art systems, the line connecting the phosphor and LED color coordinates did not approximate the BBL curve.

The illumination system according to the preferred aspects of the present invention, illustrated in Table 1 is compared to the prior art illumination system disclosed in the Nakamura text book, illustrated in Table 2, below:

**Table 1**System = LED with 478 nm emission +  $(Y_{0.37}Gd_{0.6}Ce_{0.03})_3Al_5O_{12}$  phosphor

COLOR TEMPERATURE	COLOR COORDINATE DISTANCE FROM BBL (Y-UNITS)
3800 K	0.005
4000 K	0.003
5000 K	-0.003
6000 K	-0.004
7000 K	-0.002
8000 K	-.00009
9000 K	0.002
10,000 K	0.004
10,800 K	0.005

**Table 2**

Prior Art System =

LED with 460 nm emission +  $(Y_{0.97}Ce_{0.03})_3Al_5O_{12}$  phosphor

COLOR TEMPERATURE	COLOR COORDINATE DISTANCE FROM BBL (Y-UNITS)
4000 K	0.072
5000 K	0.020
5800 K	0.005
6000 K	0.002
6800 K	-.0005

As calculated in tables 1 and 2, an exemplary system according to the preferred embodiments of the present invention emits light with color coordinates within 0.01 y-units, and preferably within 0.005 y-units from the BBL for a wider color temperature range (about 3,800 to 10,800 K) than a system according to the prior art (about 5,800 to 6,800K). Thus, the system according to the preferred embodiments of the present invention will be less sensitive to errors and variations in the luminescent material thickness than the prior art system. This leads to an improved manufacturing yield for a system manufactured according to the present invention compared to the prior art system.

For example, assume that the desired color of the light emitted by the system corresponds to the color coordinates located near points 31 and 49 in Figure 4. In order to obtain the desired color, the luminescent material thickness should be equal to a predetermined value. However, due to manufacturing error, the luminescent material may be fabricated with a thickness greater than the predetermined value.

A greater than desired luminescent material thickness results in the system color coordinates being shifted toward the luminescent material color coordinates (i.e., toward line 3 in Figure 3) along the line connecting the luminescent material color coordinates with the LED color coordinates. For example, the color coordinates of the system according to the first preferred embodiment will be shifted from point 49, along line 33 toward point 41 on line 3 in Figure 3. Likewise, the color coordinates of the prior art system will be shifted from point 49, along line 25 toward point 11 on line 3.

As is illustrated in Figures 3 and 4, the system of the first preferred embodiment allows a greater deviation than the prior art system in luminescent material thickness from the predetermined value while maintaining an acceptable white system color output. For example, the deviation in thickness may shift the color coordinates of system of the first preferred embodiment all the way to point 53 where line 33 intersects line 45, while still retaining an acceptable white color system output (i.e., the system color coordinates remain between lines 45 and 47). In contrast, the deviation in thickness may shift the color coordinates of the prior art system only to point 59, while still retaining a white color system output that is suitable for lighting applications. Any further deviation in thickness will cause the output of the prior art system to become unsuitable for lighting applications (i.e. the system color coordinates will be located between points 59 and 11, above line 45 in Figures 3-4).

The same advantages over the prior art system may also be obtained for other preferred embodiments of the present invention and also when the luminescent material thickness is below the predetermined value. In this case, the color coordinates will merely shift to the left (toward line 43) instead of toward the right (toward line 3). Furthermore, a system according to the preferred embodiments of the present invention is capable of providing an acceptable white light for lighting purposes for a broader range of color temperatures than the prior art system, without changing the composition of the luminescent material.

The white light illumination system according to the preferred aspects of the present invention may have various different structures. One preferred structure is schematically illustrated in Figure 7. The illumination system includes an LED chip 71 and leads 73 electrically attached to the LED chip. The leads 73 may comprise thin wires supported by a thicker lead frame(s) 75 or the leads may comprise self supported electrodes and the lead frame may be omitted. The leads 73 provide current to the LED chip 71 and thus cause the LED chip 71 to emit radiation, such as blue or blue-green light having a wavelength between 470 and 500 nm.

The LED chip 71 is preferably encapsulated within a shell 77 which encloses the LED chip and an encapsulant material 79. The shell 77 may be, for example, transparent glass or plastic. The encapsulant material may be, for example, an epoxy or a polymer material, such as silicone. However the shell or the encapsulating material may be omitted to simplify processing. Furthermore, the shell may comprise an opaque bottom portion and a transparent top portion comprising glass, plastic or an opening. Furthermore, the shell 77 may have any desired shape in addition to the shape shown in the Figures. The LED chip 71 may be supported, for example, by the lead frame 75, by the self supporting electrodes,

by the bottom of the shell 77 or by a pedestal mounted to the shell or to the lead frame.

The first preferred structure of the illumination system includes a luminescent material 81. The luminescent material may comprise the  $(A_{1-x}Gd_x)_2D_{12}$ : Ce phosphor or scintillator where  $x > 0.4$  formed adjacent the LED chip. If the luminescent material 81 is a phosphor, then the phosphor may be coated over or directly on the light emitting surface of the LED chip 71. If the luminescent material 81 is a solid scintillator, then the scintillator may be affixed to or over the light emitting surface of the LED chip 71. Both the shell 77 and the encapsulant 79 should be transparent to allow white light 83 to be transmitted through those elements.

Figure 8 illustrates a second preferred structure of the present invention. The structure of Figure 8 is the same as that of Figure 7, except that the luminescent material 81 is interspersed within the encapsulant material 79, instead of being formed over the LED chip 71. The luminescent material 81 may comprise a phosphor powder which is interspersed within a single region of the encapsulant material 79 or throughout the entire volume of the encapsulant material. The blue or blue-green light 85 emitted by the LED chip 71 is mixed with the yellow light emitted by the phosphor 81 to appear as white light 83.



Figure 9 illustrates a third preferred structure of the present invention. The structure of Figure 9 is the same as that of Figure 7, except that the luminescent material 81 is coated on the shell 77, instead of being formed over the LED chip 71. The luminescent material 81 is preferably a phosphor that is coated on the inside surface of the shell 77, although the luminescent material may be coated on the outside surface of the shell, if desired. The phosphor 81 may be coated on the entire surface of the shell or only a top portion of the surface of the shell. The blue or blue-green light 85 emitted by the LED chip 71 is mixed with the yellow light emitted by the phosphor 81 to appear as white light 83.

Alternatively, the shell 77 may be made of the luminescent material 81 in scintillator form. Of course, the embodiments of Figures 7-9 may be combined and the luminescent material may be located in any two or all three locations or in any other suitable location, such as separately from the shell or integrated into the LED.

According to a fourth preferred embodiment of the present invention, the white light illumination system is made by the following method. First, a line which approximates the BBL is selected. For example, a line according to the first, second or third preferred embodiment of the present invention approximates the BBL. However, other lines which approximate the BBL may be selected. Based on the selected line, an LED is formed having an emission spectrum that is represented by a point on the line that approximates the BBL. Furthermore, based on the selected line, a luminescent material is formed having an emission spectrum that is represented by another point on the line that approximates the BBL.

In the method of the fourth preferred embodiment, the term "formed" or "forming" refers both to manufacturing an LED and/or a luminescent material, as well as placing an existing LED and/or an existing luminescent material into the white light illumination system. For example, an LED may be "formed" as part of a system by selecting or buying an existing LED that has a peak emission wavelength that is represented by a point on the line that approximates the BBL and then placing the LED into the white light illumination system. The LED chip may be placed into the shell and connected to the leads. Furthermore, a plurality of LEDs and/or luminescent materials may be formed based on a single line that approximates the BBL. For example, after selecting a single line that approximates the BBL, a plurality of LEDs and/or luminescent materials may be manufactured or selected and placed into the illumination system based on the single selected line.

The phosphor form of the luminescent material may be made, for example, by any ceramic powder method, such as a liquid phase (flux) method or a solid state method. Preferably, the method of making the phosphor comprises the following steps. First, the starting compounds of the phosphor material are mixed in a crucible or another suitable container, such as a ball mill, to form a first composite powder. The preferred starting phosphor compounds comprise stoichiometric amounts of cerium oxide,  $\text{CeO}_2$ , gadolinium oxide,  $\text{GdO}_2$ , yttrium oxide,  $\text{Y}_2\text{O}_3$ , and alumina,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . If desired, a flux, such as ammonium fluoride, yttrium fluoride,  $\text{YF}_3$ , and/or aluminum fluoride,  $\text{AlF}_3$ , which improves the phosphor luminosity and efficiency, may also be added, preferably at a concentration of 0.02-0.2 mole percent per mole of the phosphor produced. Use of a flux results in a small amount of residual fluorine to be included in the  $\text{YAG:Ce:Gd}$  phosphor. Alternatively, the rare earth elements may be co-precipitated from an acid solution to form a composite rare earth oxide powder which is then mixed with the alumina powder and optionally with the flux, such as  $\text{AlF}_3$ .

The blended first powder is then sintered in a furnace or in a crucible for between about 2 and 10 hours at 1000 to 1600 °C, preferably for six hours at 1500 °C, to form a sintered body or cake. The sintering preferably takes place in a reducing atmosphere, such as in forming gas or in charcoal vapors, if the  $\text{AlF}_3$  flux is used. The sintered body is then milled to form a second powder. Preferably, the second powder is milled until it has a mean particle size of about 6 microns. The second powder is preferably milled in propanol or water as the milling media and subsequently dried. However, other milling media, such as methanol, for example, may be used instead.

The second powder is then placed into the white light illumination system. The second powder may be placed over the LED chip, interspersed into the encapsulant material or coated onto the surface of the shell, as described above with respect to the first, second and third preferred structures of the present invention. Preferably, a suspension of the second powder and a liquid is used to coat the LED chip or the shell surface. The suspension may also optionally contain a binder in a solvent. Preferably, the binder comprises an organic material, such as nitrocellulose, in a solvent such as butyl acetate, amyl acetate, methyl propanol or propylene glycol mono-methyl ether acetate at a 90-95% level with 1-2% denatured ethanol. The binder enhances the adhesion of the powder particles to each other and to the LED or the shell. However, the binder may be omitted to simplify processing, if desired. After coating, the suspension is dried and may be heated to evaporate the binder. The coated second powder acts as the phosphor after drying the solvent.

If the phosphor is to be interspersed within the encapsulant material, then the phosphor may be added as a second powder to a polymer precursor, and then the polymer precursor may be cured to solidify the polymer material. Alternatively, the second powder may be mixed in with the epoxy encapsulant. Other phosphor interspersation methods may also be used.

The scintillator form of the luminescent material may be made by any scintillator fabrication method. For example, the scintillator may be formed by Czochralski, float zone, or other crystal growing methods. The scintillator may then be placed over the LED chip or used as the shell or as a top portion of the shell.

The radiation source of the white light illumination system has been described above as a semiconductor light emitting diode. However, the radiation source of the present invention is not limited to a semiconductor light emitting diode. For example, the white light illumination system may comprise a laser diode, an organic light emitting diode (OLED), a plasma display device or a fluorescent lamp. The radiation source may comprise a gas which produces a radiative discharge in response to collisions with charged particles emitted by an electrode. The radiation emitted by the gas is incident on the luminescent material coated on a portion of the system, which causes the luminescent material to emit yellow light. The yellow light mixed with the radiation produced by the gas appears white to the observer.

Furthermore, the preferred system described above contains a single radiation source and a single luminescent material. However, if desired, plural radiation sources and/or plural luminescent materials having different emission color coordinates may be used in the system in order to improve the emitted white light or to combine the emitted white light with a light of a different color(s). For example, the white light emitting system may be used in combination with red, green and/or blue light emitting diodes in a display device.

The preferred embodiments have been set forth herein for the purpose of illustration. However, this description should not be deemed to be a limitation on the scope of the invention. Accordingly, various modifications, adaptations, and alternatives may occur to one skilled in the art without departing from the spirit and scope of the claimed inventive concept.

#### 4. Brief Description of Drawings

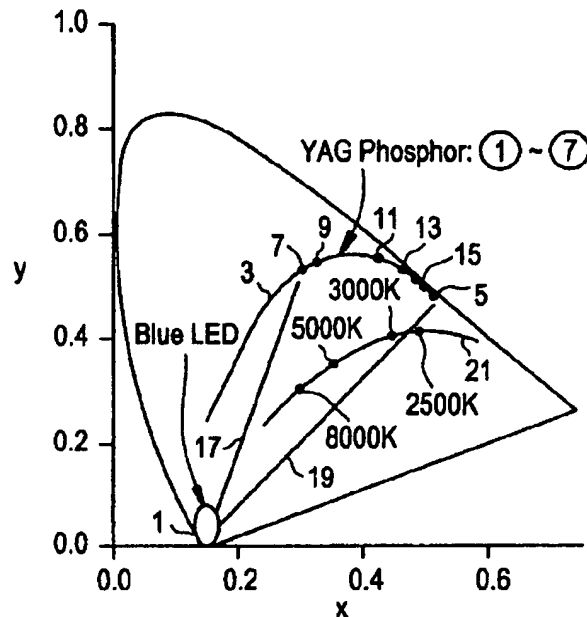
Figures 1-2 are CIE chromaticity diagrams of prior art illumination systems.

Figures 3 and 5 are CIE chromaticity diagrams of illumination systems according to the preferred embodiments of the present invention.

Figures 4 and 6 are close up views of a center region of CIE chromaticity diagrams of illumination systems according to the preferred embodiments of the present invention.

Figures 7-9 are a cross-sectional schematic views of the preferred structures of an illumination system of the present invention.

**FIG. 1**  
PRIOR ART



**FIG. 2**  
**PRIOR ART**

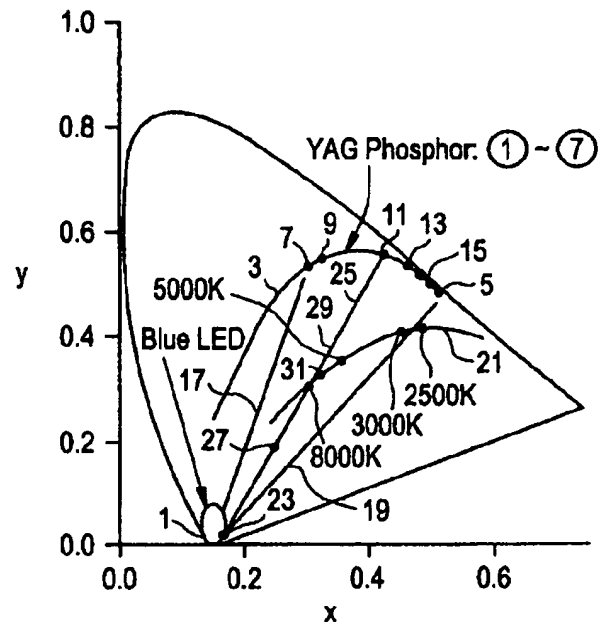
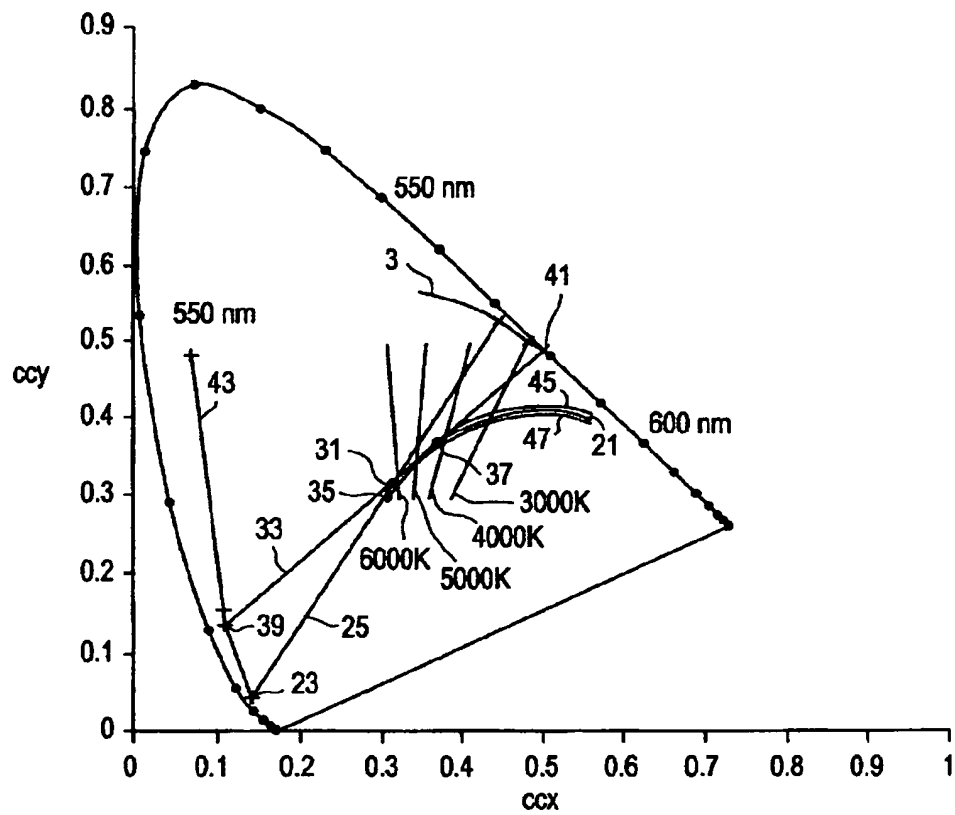


FIG. 3



**FIG. 4**

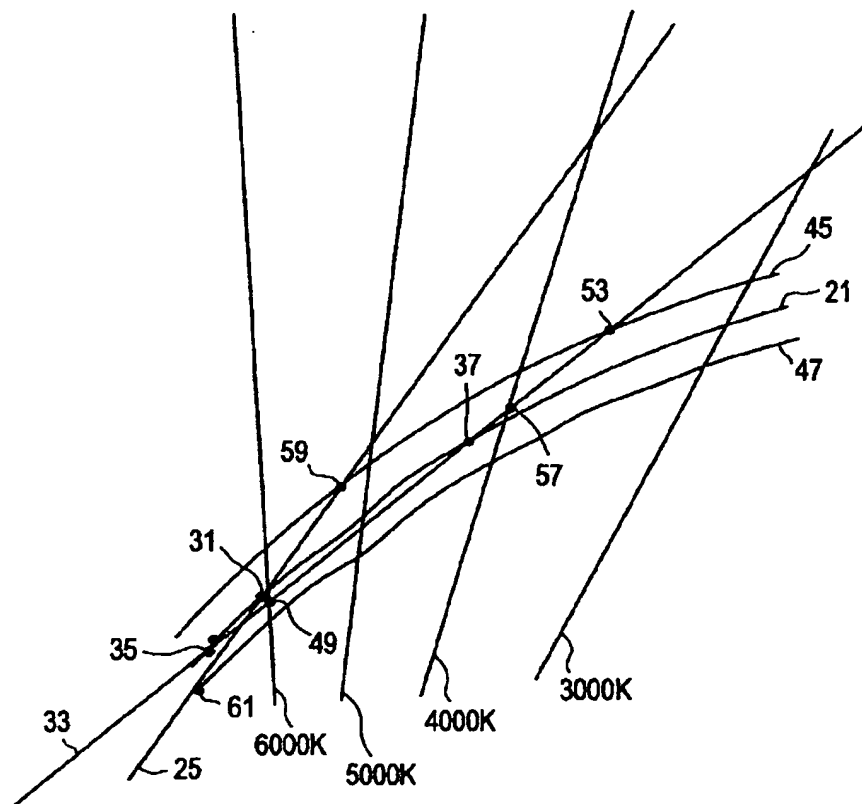
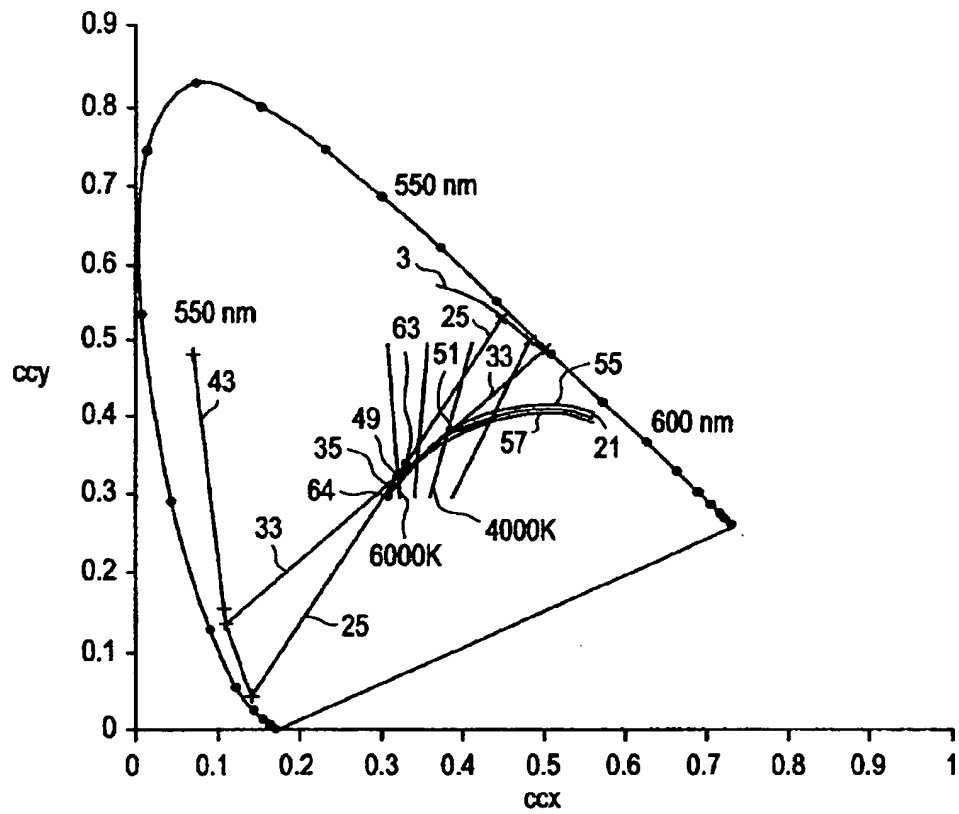
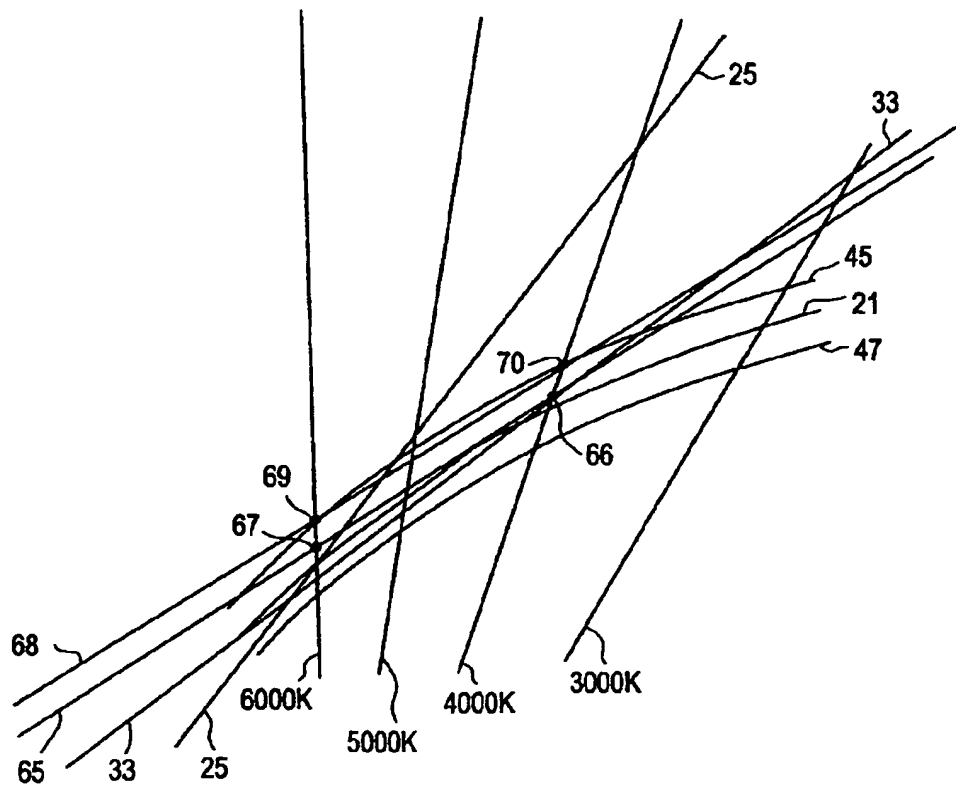




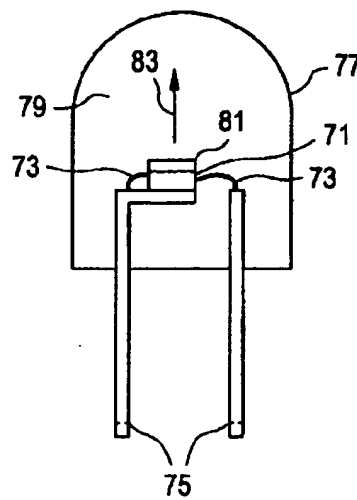
FIG. 5



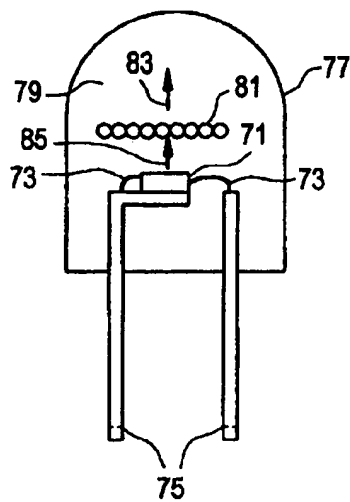
**FIG. 6**



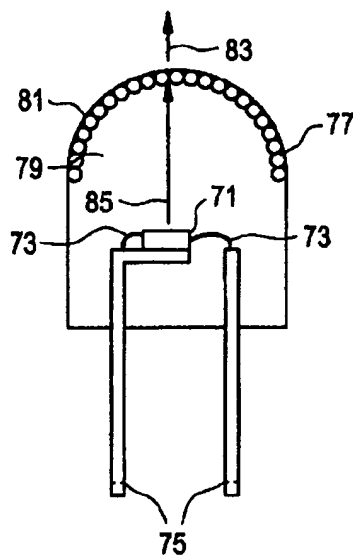
**FIG. 7**



**FIG. 8**



**FIG. 9**



## 1. Abstract

There is provided a white light illumination system including a blue LED and a luminescent material. The system color output is improved when a line connecting the LED color coordinates and the luminescent material color coordinates approximates the Black Body Locus on the CIE chromaticity diagram. The LED may have a peak emission wavelength between 470 and 500 nm. The luminescent material may be  $(Y_{1-x-z} Gd_z Ce_z)_3 Al_5 O_{12}$ , where  $0.7 > x > 0.4$  and  $0.1 > z > 0$ .

## 2. Representative Drawing: Figure 3

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**